

Thermisches Polen von Quarzglas

Dissertation

zur Erlangung des akademischen Grades
doctor rerum naturalium (Dr. rer. nat.)

vorgelegt dem Rat der Physikalisch-Astronomischen Fakultät
der Friedrich-Schiller-Universität Jena

von Dipl.-Phys. Alexander Strauß
geboren am 29. August 1974 in Gera

Gutachter:

1. Prof. Dr. Hartmut Bartelt
2. Prof. Dr. Andreas Tünnermann
3. Prof. Dr. Ernst Brinkmeyer

Tag der letzten Rigorosumsprüfung: 03. Juli 2008

Tag der öffentlichen Verteidigung: 15. Juli 2008

Inhaltsverzeichnis

1 Einleitung	1
2 Theoretische Grundlagen zu optisch nichtlinearen Eigenschaften	3
2.1 Entwicklungsgleichungen für das elektro-magnetische Feld	4
2.1.1 Nichtlineare Wellengleichung	4
2.1.2 Konversionseffizienz für SHG (undepleted-pump-approximation)	7
2.1.3 Konversionseffizienz für SHG (pump-depletion)	9
2.2 Phasenanpassung	11
2.2.1 Quasi-Phasenanpassung und Kohärenzlänge	12
2.2.2 Entwicklung des nichtlinearen Koeffizienten für QPM	14
2.2.2.1 Änderung von $d(z)$ durch periodisches Umschalten	15
2.2.2.2 Änderung von $d(z)$ durch periodisches Abschalten	16
2.2.3 Vergleich der unterschiedlichen Typen der Phasenanpassung	17
2.2.4 Empfindlichkeit der Phasenanpassung auf die Variation verschiedener Größen	18
2.2.4.1 Periodenfehler	20
2.2.4.2 spektrale Bandbreite der Phasenanpassung	21
2.2.4.3 Temperatur-Bandbreite der Phasenanpassung	22
3 Konzepte und Eigenschaften von thermisch gepoltem Quarzglas	23
3.1 Glasstruktur – Netzwerkhypothese	23
3.2 Der Mechanismus des Polens	26
3.2.1 Optisches Polen	27
3.2.2 UV-Polen	27
3.2.3 Thermisches Polen	28
3.3 Berechnung der Tiefenausdehnung der <i>depletion-layer</i>	31
3.3.1 Tiefenausdehnung bei direkter Elektrodenkontaktierung der Probe	31
3.3.2 Tiefenausdehnung bei vorhandenem Luftspalt zwischen Elektrode und Probe	33
3.4 Auswirkungen des Polungsprozesses auf die Symmetrieverhältnisse im Quarzglas	36
3.4.1 Suszeptibilitätstensor dritter Ordnung bei isotropen Medien	36
3.4.2 Suszeptibilitätstensor zweiter Ordnung bei gepoltem Quarzglas	37
3.4.3 Auswirkungen der Polarisationsseigenschaften der Fundamentalwelle auf die Effizienz und die Polarisationsseigenschaften der zweiten Harmonischen	38
4 Messplätze	43
4.1 Aufbau des Polungsmessplatzes	43
4.1.1 Vakuumerzeugung	44
4.1.2 Temperaturregelung	45
4.1.3 Hochspannungserzeugung	45
4.1.4 Strommessung im Sub-pA-Bereich	46
4.1.5 Messdatenerfassung	46
4.2 Nachweismessplatz	46

5 Strukturierung von Elektroden.....	50
5.1 Mikrostrukturierung durch Laserablation.....	50
5.2 Strukturierung durch lokale Laserreduktion.....	52
5.3 Strukturierung durch optische Lithographie.....	54
5.4 Vergleich der unterschiedlichen Strukturierungsverfahren.....	56
6 Polung und optische Untersuchungen an planaren Quarzglasproben.....	58
6.1 Grundlegende Experimente.....	58
6.1.1 Fundamentale Polungsversuche.....	58
6.1.2 Nachweis des SHG-Signals.....	60
6.1.3 Materialeigenschaften.....	63
6.2 Einfluss der Polungsparameter auf das SHG-Signal.....	65
6.2.1 Einfluss der Polungstemperatur.....	66
6.2.2 Einfluss der Polungsspannung.....	66
6.3 Stabilität der generierten Nichtlinearität zweiter Ordnung.....	67
6.3.1 Alterungserscheinungen.....	67
6.3.2 Einfluss der Umgebungstemperatur.....	68
6.3.3 Einfluss von UV-Bestrahlung.....	69
6.4 Experimentelle Bestimmung der Tiefenausdehnung der <i>depletion-layer</i>	71
6.4.1 Modifizierte Stack-Maker-fringe Messung.....	72
6.4.2 Bestimmung der Tiefenausdehnung durch stufenweises Abätzen...	74
6.5 Abschätzung des induzierten nichtlinearen Koeffizienten.....	76
6.6 Messung des Verhältnisses der Tensorkomponenten des generierten $\chi^{(2)}_{eff}$	77
6.7 Steigerung des SHG-Signals durch periodisch gepolte Quarzglasproben...	79
7 Polungsuntersuchungen an Quarzglasfasern.....	82
7.1 Herstellung geeigneter Quarzglasfasern.....	83
7.1.1 Herstellung einer Faserpreform.....	83
7.1.2 Faserziehen.....	84
7.2 Elektrodenstrukturierung der Quarzglasfasern.....	86
7.2.1 Ätzen der Faser.....	86
7.2.2 Einbringen der Kathode.....	87
7.2.3 Aufbringen der Anode.....	89
7.2.4 Polung der Faser.....	90
7.3 SHG-Nachweis in der gepolten Quarzglasfaser.....	91
8 Zusammenfassung und Ausblick.....	96
9 Literaturverzeichnis.....	98

1 Einleitung

Anfang der sechziger Jahre wurden die ersten Laser realisiert. Laser haben seit dem eine rasante Entwicklung genommen, und sind aus dem heutigen Leben nicht mehr wegzudenken. Durch die Laser sind ausreichend hohe Intensitäten zugänglich geworden, mit denen effizient nichtlinear-optische Effekte, wie beispielsweise Frequenzkonversion, experimentell beobachtet und untersucht werden konnten. So erzeugten 1961 Franken et al. unter Zuhilfenahme eines Quarz-Kristalls die zweite Harmonische eines Rubin-Lasers [FRA61]. Seit dem ist es möglich, mit Hilfe nichtlinear-optischer Medien ($\chi^{(2)}$ -Medien) auch die sichtbaren und ultravioletten Spektralbereiche durch Laserstrahlung zu erzeugen. Einsatz finden diese neu erschlossenen Wellenlängen beispielsweise in der Druck-, Mess-, Bio- oder Displaytechnologie. In der optischen Signalverarbeitung sind häufig aktive Funktionen erforderlich (Schalten, Modulieren), was durch den Einsatz aktiver, nichtlinearer Materialien ermöglicht wird. Typischerweise werden dazu $\chi^{(2)}$ -Kristalle eingesetzt (LiNbO₃, KTP, LBO, LiTaO₃, LiB₃O₅,...). Allerdings haben Konzepte unter Nutzung dieser Kristalle Einschränkungen bezüglich Robustheit und Kompaktheit. Sie erfordern beim Einsatz einen anspruchsvollen Umgang (Justage, Phasenanpassung) und sie sind relativ teuer.

Quarzglas, das Basismaterial in der Photonik, ist kostengünstig und in hoher Qualität verfügbar. Allerdings ist aufgrund der in Quarzglas vorliegenden Inversionssymmetrie keine Frequenzkonversion möglich ($\chi^{(2)} = 0$), sodass es vorzugsweise zur passiven Signalübertragung eingesetzt wird, meist jedoch nicht zur aktiven Beeinflussung von Strahlung.

Erstmals zeigten 1991 Brueck et al., dass durch *thermisches Polen*, d.h. Anlegen einer Hochspannung und Temperaturerhöhung auf ~ 300 °C, eine Nichtlinearität zweiter Ordnung ($\chi^{(2)}$) in planaren Quarzglasproben erzeugt und konserviert werden kann [MYE91]. Kazansky et al. generierten 1994 durch thermisches Polen ein $\chi^{(2)}$ in einer optische Glasfaser, und setzten diese Faser zur SHG-Erzeugung ein [PRU99].

Obwohl die Erzeugung eines $\chi^{(2)}$ in Quarzglasfasern von extremer praktischer Bedeutung wäre, z.B. für All-Faser-Lösungen im sichtbaren Spektralbereich oder für Schalt- und Signalmodulation in Fasern, sind bisher vergleichsweise wenige Arbeiten erschienen, welche sich mit der Thematik des thermischen Polens befassen, bzw. die bestehenden Ergebnisse bestätigen.

In dieser Arbeit soll der Effekt des thermischen Polens in planaren Quarzglasproben und in optischen Quarzglasfasern untersucht werden. Anschließend wird in den gepolten Proben eine Frequenzverdoppelung durchgeführt, wobei hier kürzere als bisher erreichte Wellenlängen im sichtbaren Spektralbereich bei 532 nm erzeugt werden sollen. Außerdem werden in dieser Arbeit auch unterschiedliche Gläser hinsichtlich ihrer Eignung für das thermische Polen untersucht. Mit dieser Kenntnis wird eine geeignete optische Faser entwickelt, welche durch neuartige Methoden mit besonderen Elektroden versehen wird, sodass dadurch eine periodische Polung dieser Faser ermöglicht wird.

In Kapitel 2 werden die dazu notwendigen theoretischen Grundlagen der nichtlinearen Optik abgehandelt. Kapitel 3 schildert detailliert die Vorgänge beim thermischen Polen, wobei auch Modellrechnungen zur Tiefenausdehnung der sich beim Polen ausbildenden nichtlinearen Schicht durchgeführt werden. Weiterhin wird die Entstehung des Suszeptibilitätstensors zweiter Ordnung ($\chi^{(2)}$) aus einem Raumladungsfeld E_0 und dem im Quarzglas vorhandenen $\chi^{(3)}$ – Tensor erklärt. In Kapitel 4 werden die zur Polung bzw. zum optischen Nachweis aufgebauten Messplätze vorgestellt. Kapitel 5 stellt drei unterschiedliche Verfahren vor, mit denen strukturierte Elektroden auf die Quarzglasproben aufgebracht werden können, und vergleicht deren Eignung. In Kapitel 6 wird die Polung von planaren Quarzproben behandelt, wobei geeignete Polungsparameter und Materialeigenschaften untersucht und ermittelt werden sollen. Weiterhin wird die Tiefenausdehnung der nichtlinearen Schicht bestimmt, der erhaltene nichtlineare Koeffizient abgeschätzt, seine Stabilität untersucht und eine geeignete Periodenlänge für die Quasiphasenanpassung (QPM) bestimmt. In Kapitel 7 wird beschrieben, wie mit Hilfe der Erkenntnisse aus den vorherigen Kapiteln eine optische Faser hergestellt und periodisch gepolt wird. Anschließend wird in dieser Faser die erzeugte Nichtlinearität durch Erzeugung der zweiten Harmonischen nachgewiesen. Kapitel 8 fasst die Ergebnisse der Arbeit zusammen und gibt einen Ausblick auf mögliche weitere Entwicklungen.

2 Theoretische Grundlagen zu optisch nichtlinearen Eigenschaften

Durch die Polung von Quarzglas wird in diesem ursprünglich isotropen Material eine Anisotropie, und damit eine effektive Nichtlinearität zweiter Ordnung ($\chi^{(2)}_{eff}$) dauerhaft eingebracht. Dadurch eröffnen sich Möglichkeiten, in gepoltem Quarzglas nichtlinear-optische Effekte, wie beispielsweise die Erzeugung der zweiten Harmonischen, zu realisieren. Deshalb sollen in diesem Kapitel die grundlegenden theoretischen Zusammenhänge für die Wechselwirkung elektromagnetischer Strahlung mit nichtlinear-optischen Medien betrachtet werden. Ausgehend von den Maxwellgleichungen wird die Grundgleichung der nichtlinearen Optik – die nichtlineare Wellengleichung – hergeleitet. Unter Zuhilfenahme angemessener Näherungen lassen sich daraus in Abhängigkeit des Pumplichtverbrauches entsprechende Gleichungen für die Konversionseffizienz bei der Erzeugung der zweiten Harmonischen ableiten.

Ein entscheidender Faktor für die Konversionseffizienz beinhaltet die Phasenbeziehung der Wellenzahlvektoren der beteiligten Wellen. Durch eine Phasenanpassung dieser Wellenzahlvektoren lässt sich dieser Faktor optimieren. Deshalb soll folglich auf eine Möglichkeit der Phasenanpassung – auf die Methode der Quasiphasenanpassung (QPM) – genauer eingegangen werden. Für diese auch bei der Polung von Quarzglas anwendbare QPM werden im Anschluss die längenabhängigen Änderungen des nichtlinearen Koeffizienten in Abhängigkeit des verwendeten Mediums betrachtet.

Schließlich sollen am Ende des Kapitels mögliche Abweichungen von den idealen Parametern (Periodenfehler, spektrale Bandbreite) und deren Auswirkungen auf die Phasenanpassung, und damit auf die Konversionseffizienz betrachtet werden.

2.1 Entwicklungsgleichungen für das elektro-magnetische Feld

2.1.1 Nichtlineare Wellengleichung

Bei der Einstrahlung intensiver elektromagnetischer Felder in ein dielektrisches Medium, antwortet dieses mit einer nichtlinearen Response. Der Ursprung dieser nichtlinearen Response liegt in der anharmonischen Auslenkung der gebundenen Elektronen durch den Einfluss des eingestrahlten Feldes. Die Folge ist, dass sich die induzierte Polarisierung \vec{P} der elektrischen Dipole nicht linear zum elektrischen Feld \vec{E} verhält. Diese Abhängigkeit wird durch folgende Potenzreihenentwicklung beschrieben [BOY92, AGR01], wobei sich die Polarisierung in einen linearen Anteil (\vec{P}^L) und in einen nichtlinearen Anteil (\vec{P}^{NL}) untergliedern lässt:

$$\vec{P} = \underbrace{\varepsilon_0 \cdot \chi^{(1)} \cdot \vec{E}}_{\vec{P}^L} + \underbrace{\varepsilon_0 \cdot \chi^{(2)} \cdot \vec{E}\vec{E} + \varepsilon_0 \cdot \chi^{(3)} \cdot \vec{E}\vec{E}\vec{E} + \dots}_{\vec{P}^{NL}} \quad (2.1)$$

Hierin ist $\chi^{(j)}$ die Suszeptibilität j -ter Ordnung, ein Tensor vom Rang $j+1$, und ε_0 ist die Vakuum-Dielektrizitätskonstante mit $\varepsilon_0 = 8,854 \cdot 10^{-12} \text{ As/Vm}$. Die lineare Suszeptibilität $\chi^{(1)}$ liefert den Hauptanteil der induzierten Polarisierung \vec{P} und bestimmt den linearen Brechungsindex n . Die Polarisierung geht über die dielektrische Verschiebung \vec{D} in die Maxwellgleichungen ein. Die Maxwellgleichungen bilden die Grundlage für die Beschreibung der Ausbreitung elektromagnetischer Wellen, wobei im quelfreien dielektrischen Medium gilt [LAU93]:

$$\begin{aligned} \operatorname{div} \vec{D} &= 0 & \operatorname{div} \vec{B} &= 0 \\ \operatorname{rot} \vec{E} &= -\frac{d\vec{B}}{dt} & \operatorname{rot} \vec{H} &= \frac{d\vec{D}}{dt} \end{aligned} \quad (2.2)$$

wobei \vec{H} die magnetische Feldstärke und \vec{B} die magnetische Induktion ist. Der Einfluss der Materie geht über die Polarisierung \vec{P} und die Magnetisierung \vec{M} in die Materialgleichungen ein, wobei für Lichtfrequenzen im Glas $\vec{M} = 0$ gilt.

$$\vec{D} = \varepsilon_0 \cdot \vec{E} + \vec{P} \quad \vec{B} = \mu_0 \cdot \vec{H} + \vec{M} \quad (2.3)$$

Der Wert der magnetischen Permeabilität im Vakuum beträgt $\mu_0 = 4\pi \cdot 10^{-7} \text{ Vs/Am}$. Daraus lässt sich mit einfachen algebraischen Umformungen und unter Zuhilfenahme der Beziehung $\frac{1}{c} = \sqrt{\varepsilon_0 \cdot \mu_0}$ (c = Vakuumlichtgeschwindigkeit) die Grundgleichung der nichtlinearen Optik, die nichtlineare Wellengleichung, ableiten:

$$\Delta \vec{E} - \frac{1}{c^2} \cdot \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} (\vec{P}^L + \vec{P}^{NL}), \quad (2.4)$$

woraus sich mit $\vec{P}^L = \varepsilon_0 \cdot \chi^{(1)} \cdot \vec{E}$ und der Maxwellschen Relation $n^2 = \varepsilon_r = (1 + \chi^{(1)})$ (ε_r = relative Dielektrizitätskonstante) sofort Gleichung (2.5) ergibt

$$\Delta \vec{E} - \frac{n^2}{c^2} \cdot \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2 \vec{P}^{NL}}{\partial t^2}. \quad (2.5)$$

Für die Felder werden die Gleichungen (2.6) und (2.7) angesetzt, wobei zunächst von einem isotropen Medium mit $\vec{E} \parallel \vec{P}^{NL}$ ausgegangen wird, so dass die skalare Schreibweise verwendet werden kann. Weiterhin ist es bei der Behandlung nichtlinearer Effekte üblich, den räumlichen und zeitlichen Anteil zu separieren

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \frac{1}{2} \cdot (\vec{E}_\omega \cdot \exp(-i(\omega t - \vec{k}_\omega \vec{r})) + c.c.) \quad (2.6)$$

$$\vec{P}(\vec{r}, t) = \frac{1}{2} \cdot (\vec{P}_\omega \cdot \exp(-i(\omega t - \vec{k}_\omega \vec{r})) + c.c.). \quad (2.7)$$

Zunächst soll nur eine Ausbreitung entlang der z-Achse betrachtet werden. Unter Betrachtung des Realteiles der Wellen, wird der erste Summand auf der linken Seite der Wellengleichung zu:

$$\Delta E = \frac{\partial^2 E}{\partial z^2} = \left[\frac{\partial^2 E}{\partial z^2} + 2 \cdot i \cdot k_{2\omega} \cdot \frac{\partial E}{\partial z} - k_{2\omega}^2 \cdot E_{2\omega} \right] \cdot \exp(-i(2\omega t - k_{2\omega} z)) \quad (2.8)$$

Unter Zuhilfenahme der Näherung der sich langsam veränderlichen Amplitude, der SVEA – *slowly varying envelope approximation* (Gleichung (2.9)), kann die obige Gleichung zu Gleichung (2.10) vereinfacht werden. Bei der SVEA wird davon ausgegangen, dass sich die Amplitude $E_{2\omega}(z)$, verglichen mit der optischen Trägerwelle, nur wenig über der Länge z ändert. Für diesen Fall gilt:

$$\left| k_{2\omega} \cdot \frac{\partial E}{\partial z} \right| \gg \left| \frac{\partial^2 E}{\partial z^2} \right|. \quad (2.9)$$

$$\Delta E = \frac{\partial^2 E}{\partial z^2} = [2 \cdot i \cdot k_{2\omega} \cdot \frac{\partial E}{\partial z} - k_{2\omega}^2 \cdot E_{2\omega}] \cdot \exp(-i(2\omega t - k_{2\omega} z)) \quad (2.10)$$

Für den darin vorkommenden Wellenzahlvektor $k_{2\omega}$ folgt:

$$k_{2\omega} = \frac{2\omega}{c} \cdot n_{2\omega}. \quad (2.11)$$

Für den zweiten Summanden auf der linken Seite der Wellengleichung erhält man:

$$\frac{n_{2\omega}^2}{c^2} \cdot \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = \underbrace{\frac{-n_{2\omega}^2 4\omega^2}{c^2}}_{-k_{2\omega}^2} \cdot E_{2\omega} \cdot \exp(-i(2\omega t - k_{2\omega} z)). \quad (2.12)$$

Die rechte Seite der Wellengleichung nimmt folgende Form an:

$$\mu_0 \cdot \frac{\partial^2 P^{NL}}{\partial t^2} = -4 \cdot \omega^2 \cdot \mu_0 \cdot P_{2\omega}^{NL} \cdot \exp(-2i(\omega t - k_{\omega} z)). \quad (2.13)$$

Nach dem Einsetzen dieser Terme in die nichtlineare Wellengleichung (2.5),

$$[2 \cdot i \cdot k_{2\omega} \cdot \frac{\partial E}{\partial z} - k_{2\omega}^2 \cdot E_{2\omega}] \cdot \exp(-i(2\omega t - k_{2\omega} z)) + k_{2\omega}^2 \cdot E_{2\omega} \cdot \exp(-i(2\omega t - k_{2\omega} z)) = -4 \cdot \omega^2 \cdot \mu_0 \cdot P_{2\omega}^{NL} \cdot \exp(-2i(\omega t - k_{\omega} z))$$

und einigen simplen Vereinfachungen, ergibt sich daraus

$$\frac{\partial E}{\partial z} = \frac{2 \cdot i \cdot \mu_0 \cdot \omega^2}{k_{2\omega}} \cdot P_{2\omega}^{NL} \cdot \exp(-i \cdot (k_{2\omega} - 2k_{\omega}) \cdot z). \quad (2.14)$$

Unter Zuhilfenahme der Gleichungen (2.15) und (2.16) kann Gleichung (2.14) in Gleichung (2.17) überführt werden.

$$\Delta k = k_{2\omega} - 2k_{\omega} = \frac{2\omega}{c} (n_{2\omega} - n_{\omega}) \quad (2.15)$$

$$P_{2\omega}^{NL} = d \cdot \varepsilon_0 \cdot E^2(z) \quad (2.16)$$

$$\frac{\partial E_{2\omega}}{\partial z} = \frac{i \cdot \omega}{n_{2\omega}} \cdot \sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_0}} \cdot \varepsilon_0 \cdot d \cdot E_{\omega}^2(z) \cdot \exp(i \cdot \Delta k \cdot z) \quad (2.17)$$

Der in Gleichung (2.16) vorkommende Proportionalitätsfaktor d kann aus dem Tensor \tilde{d} berechnet werden, welcher in direktem Zusammenhang mit dem Suszeptibilitätstensor zweiter Ordnung $\chi^{(2)}$ steht.

Im Hinblick auf das Ziel dieser Arbeit, die Erzeugung eines $\chi^{(2)}$ im Quarzglas und dessen Nachweis mittels der zweiten Harmonischen, ist in Gleichung (2.18) der Zusammenhang zwischen \tilde{d} und $\chi^{(2)}$ für den Fall der SHG-Erzeugung angegeben [BUT90].

$$\tilde{d}(-2\omega; \omega, \omega) = \frac{1}{2} \cdot \chi^{(2)}(-2\omega; \omega, \omega) \quad (2.18)$$

2.1.2 Konversionseffizienz für SHG bei undepleted-pump-approximation

Um die Konversionseffizienz bei der Erzeugung der zweiten Harmonischen zu berechnen, erweist es sich als hilfreich bei schwacher nichtlinearer Wechselwirkung die *undepleted-pump-approximation* anzuwenden. Dafür wird vorausgesetzt, dass während der nichtlinearen Wechselwirkung fast keine Abschwächung der Fundamentalwelle stattfindet, d.h. $E_{\omega}(0) \sim E_{\omega}(L) \sim \text{const.}$

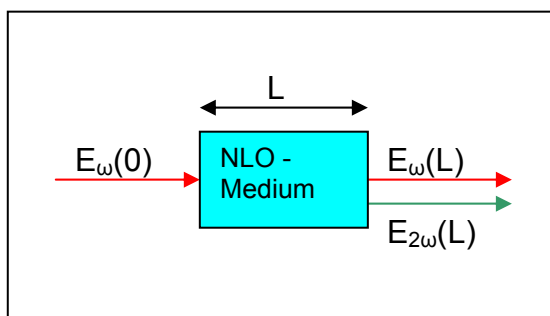


Abbildung 2.1

Erzeugung der zweiten Harmonischen im NLO-Medium. Für undepleted pump approximation gilt: $E_{\omega}(0) \sim E_{\omega}(L) \sim \text{const.}$

Dadurch vereinfacht sich die Integration von Gleichung (2.17):

$$E_{2\omega} = \frac{i \cdot \omega}{n_{2\omega}} \cdot \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_0}} \cdot \epsilon_0 \cdot d \cdot E_{\omega}^2(0) \cdot \int_0^L \exp(i \cdot \Delta k \cdot z) \cdot dz . \quad (2.19)$$

Integration, Erweiterung mit $L/2$ und $\exp(i \cdot \Delta k \cdot \frac{L}{2})$ liefert unter Berücksichtigung der

Definitionen $\sin(x) \equiv \frac{\exp(ix) - \exp(-ix)}{2i}$ und $\text{sinc}(x) \equiv \frac{\sin(x)}{x}$ sofort für $E_{2\omega}$:

$$E_{2\omega} = \frac{i \cdot \omega}{n_{2\omega}} \cdot \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_0}} \cdot \epsilon_0 \cdot d \cdot E_{\omega}^2(0) \cdot \exp\left(i \cdot \frac{\Delta k \cdot L}{2}\right) \cdot L \cdot \text{sinc}\left(\frac{\Delta k \cdot L}{2}\right). \quad (2.20)$$

Unter Einführung der Intensität, für welche im Allgemeinen die folgende Gleichung gilt [WEG05],

$$I_{2\omega} = \frac{n_{2\omega}}{2} \cdot \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} \cdot \vec{E}_{2\omega}^2, \quad I_{\omega} = \frac{n_{\omega}}{2} \cdot \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} \cdot \vec{E}_{\omega}^2 \quad (2.21)$$

erhält man aus Gleichung (2.21) sofort:

$$I_{2\omega} = \frac{n_{2\omega}}{2} \cdot \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} \cdot \frac{\omega^2}{n_{2\omega}^2} \cdot \left(\frac{\mu_0}{\epsilon_0}\right) \cdot \epsilon_0^2 \cdot d^2 \cdot E_{\omega}^4(0) \cdot \exp(i \cdot \Delta k \cdot L) \cdot L^2 \cdot \text{sinc}^2\left(\frac{\Delta k \cdot L}{2}\right). \quad (2.22)$$

Bezieht man sich nun auf I_{ω} , so folgt unter Berücksichtigung des bekannten Zusammenhanges (2.23) die Gleichung (2.24),

$$\frac{1}{c} = \sqrt{\epsilon_0 \cdot \mu_0} \quad (2.23)$$

$$I_{2\omega} = \frac{2 \cdot \omega^2}{n_{\omega}^2 \cdot n_{2\omega} \cdot \epsilon_0 \cdot c^3} \cdot d^2 \cdot L^2 \cdot I_{\omega}^2(0) \cdot \text{sinc}^2\left(\frac{\Delta k \cdot L}{2}\right) \quad (2.24)$$

woraus sich die bekannte Formel für die Konversionseffizienz bei der Erzeugung der zweiten Harmonischen ergibt [BUT90]:

$$\eta_{SHG} \equiv \frac{I_{2\omega}}{I_{\omega}} = \frac{2 \cdot \omega^2}{\varepsilon_0 \cdot c^3} \cdot \frac{d^2 \cdot L^2}{n_{\omega}^2 \cdot n_{2\omega}} \cdot I_{\omega}(0) \cdot \text{sinc}^2\left(\frac{\Delta k \cdot l}{2}\right). \quad (2.25)$$

2.1.3 Konversionseffizienz für SHG bei pump-depletion

Die im vorherigen Abschnitt hergeleitete Gleichung (2.25) für die undepleted-pump-approximation gilt nur für geringe Konversionseffizienzen von etwa bis zu 20 %. Für den Fall der Phasenanpassung ($\Delta k = 0$, Abschnitt 2.2) wächst $I_{2\omega}$ rasch mit L^2 an. Bei ausreichend hohen Eingangsintensitäten und Konverterlängen werden große Konversionseffizienzen erhalten und man kann die pump-depletion nicht länger vernachlässigen. Damit ist eine exakte Lösung der nichtlinearen Wellengleichung notwendig. Hier wird wieder der bereits oben abgeleitete Ansatz (2.17) verwendet, jetzt allerdings nicht unter der Annahme der undepleted-pump-approximation, sondern mit $E_{\omega} = E_{\omega}(z) \neq \text{const}$, also unter Berücksichtigung der pump-depletion (Abb. 2.2):

$$\frac{\partial E_{2\omega}}{\partial z} = i \cdot \gamma \cdot E_{\omega}^2(z) \cdot \exp(i \cdot \Delta k \cdot z), \quad (2.26)$$

$$\text{wobei für } \gamma \text{ gilt: } \gamma = \frac{\omega}{n_{2\omega}} \cdot \sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_0}} \cdot \varepsilon_0 \cdot d.$$

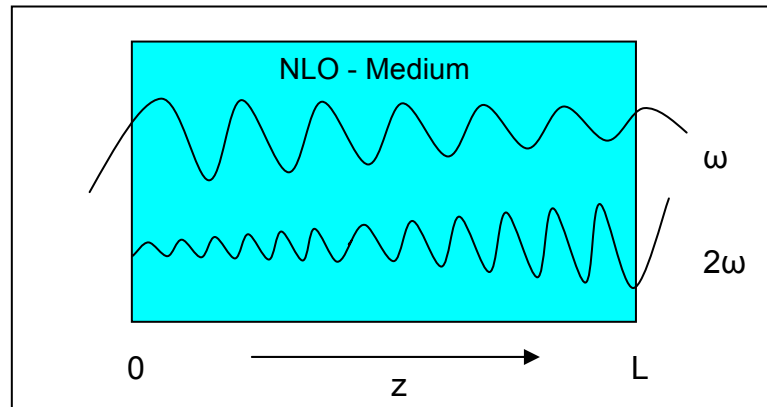


Abbildung 2.2 Entstehung der zweiten Harmonischen im NLO-Medium bei gleichzeitiger Energieverminderung der Fundamentalwelle, es gilt: $E_{\omega}(0) > E_{\omega}(z)$, $E_{2\omega}(0) < E_{2\omega}(z)$.

Jetzt betrachtet man nur reelle Größen und setzt die bei hohen Umwandlungswirkungsgraden nötige Phasenanpassung $\Delta k = 0$ voraus. Weiterhin gelten die folgenden Randbedingungen:

$$E_{\omega}^2(0) = 1 \quad \text{und} \quad E_{2\omega}^2(0) = 0,$$

welche besagen, dass die gesamte am Anfang zur Verfügung stehende Energie in $E_{\omega}(0)$ steckt und dass $E_{2\omega}$ erst im Medium entsteht. Unter der Bedingung für die Energieerhaltung:

$$E_{\omega}^2(z) + E_{2\omega}^2(z) = \text{const.} = E_{\omega}^2(0), \quad (2.27)$$

gelangt man unter Zuhilfenahme von $\int \frac{dx}{a^2 - x^2} = \frac{1}{a} \cdot \text{artanh}\left[\frac{x}{a}\right]$ letztlich zu Gleichung (2.30)

$$\frac{dE_{2\omega}}{E_{\omega}^2(0) - E_{2\omega}^2(z)} = \gamma \cdot dz, \quad (2.28)$$

$$\gamma \cdot L = \frac{1}{E_{\omega}(0)} \cdot \text{artanh}\left[\frac{E_{2\omega}(z)}{E_{\omega}(0)}\right] \quad (2.29)$$

$$E_{2\omega}(L) = E_{\omega}(0) \cdot \tanh[E_{\omega}(0) \cdot \gamma \cdot L]. \quad (2.30)$$

Nach dem Einsetzen der ursprünglichen Werte für $\gamma = \frac{\omega}{n_{2\omega}} \cdot \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_0}} \cdot \epsilon_0 \cdot d$, unter Zuhilfenahme von Gleichung (2.17) und mit der bei hohen Konversionseffizienzen notwendigen Phasenanpassungsbedingung $n_{\omega} = n_{2\omega}$, folgt für die Intensität der zweiten Harmonischen unter Berücksichtigung der pump-depletion nach wenigen Schritten die Gleichung (2.33)

$$\sqrt{I_{2\omega}(L) \cdot \frac{2}{n_{\omega}} \cdot \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_0}}} = \sqrt{I_0(0) \cdot \frac{2}{n_{\omega}} \cdot \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_0}}} \cdot \tanh\left[\sqrt{I_0(0) \cdot \frac{2}{n_{\omega}} \cdot \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_0}}} \cdot \gamma \cdot L\right] \quad (2.31)$$

$$I_{2\omega}(L) = I_{\omega}(0) \cdot \tanh^2\left[\sqrt{I_{\omega}(0) \cdot \frac{2}{n_{\omega}} \cdot \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_0}}} \cdot \frac{\omega}{n_{\omega}} \cdot \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_0}} \cdot \epsilon_0 \cdot d \cdot L\right] \quad (2.32)$$

$$I_{2\omega}(L) = I_{\omega}(0) \cdot \tanh^2 \left[\sqrt{\frac{2 \cdot \omega^2 \cdot d^2 \cdot I_{\omega}(0)}{\epsilon_0 \cdot c^3 \cdot n_{\omega}^3}} \cdot L \right]. \quad (2.33)$$

In Analogie zu den obigen Berechnungen erhält man für die sich längenabhängig vermindende Intensität der Fundamentalwelle $I_{\omega}(L)$ folgende Gleichung:

$$I_{\omega}(L) = I_{\omega}(0) \cdot \operatorname{sech}^2 \left[\sqrt{\frac{2\omega^2}{\epsilon_0 c^3} \cdot \frac{\bar{d}^2}{n_{\omega}^3} \cdot I_{\omega}(0)} \cdot L \right]. \quad (2.34)$$

Aus dem Verhältnis von $I_{2\omega}$ zu I_{ω} kann jetzt die Gleichung für die Konversionseffizienz bei der Erzeugung der zweiten Harmonischen unter Berücksichtigung von pump-depletion und Phasenanpassung abgeleitet werden:

$$\eta_{SHG} \equiv \frac{I_{2\omega}}{I_{\omega}} = \tanh^2 \left[\sqrt{\frac{2 \cdot \omega^2 \cdot d^2 \cdot I_{\omega}(0)}{\epsilon_0 \cdot c^3 \cdot n_{\omega}^3}} \cdot L \right]. \quad (2.35)$$

2.2 Phasenanpassung

Die durch die eingestrahlte Fundamentalwelle im nichtlinearen Medium generierte Polarisierung breitet sich mit der Phasengeschwindigkeit der Fundamentalwelle aus, also mit $\frac{\omega}{k_{\omega}}$. Hingegen beträgt die Geschwindigkeit der durch diese

Polarisierungswelle generierten zweiten Harmonischen $\frac{2\omega}{k_{2\omega}}$. Folglich bleiben die

beiden Wellen bei der Ausbreitung durch das Medium nicht phasensynchron, wodurch auch der Energietransfer zwischen der Polarisierungswelle und der zweiten Harmonischen schwankt. Um einen maximalen Energietransfer zu gewährleisten, ist eine Phasenanpassung der beteiligten Wellen erforderlich. Der in Gleichung (2.25) bei der Darstellung der Konversionseffizienz vorkommende Faktor $\operatorname{sinc}^2\left(\frac{\Delta k \cdot l}{2}\right)$ beschreibt den Einfluss der Phasenanpassung auf die Höhe der

Konversionseffizienz. Voraussetzung für Frequenzverdopplung mit hoher Konversionseffizienz ist die Einhaltung der Bedingung für Phasenanpassung $\Delta k = 0$. Nach Gleichung (2.15) ist diese Bedingung für den Fall $k_{2\omega} = 2k_{\omega}$, also letztendlich für $n_{2\omega} = n_{\omega}$ erfüllt. Dies ist aufgrund des Dispersionsverhaltens elektromagnetischer

Strahlung im optisch sichtbaren Bereich zwischen den UV- und IR-Absorptionsbändern allein durch die Materialeigenschaften nicht zu erfüllen. Dennoch kann Phasenanpassung beispielsweise durch Winkelphasenanpassung in optisch doppelbrechenden Medien erreicht werden. Hierbei wird die Winkelabhängigkeit des Brechungsindex von der Polarisationsrichtung der einfallenden Welle ausgenutzt. Somit ist es möglich, unter Einstrahlung eines bestimmten Einfallswinkels, die gleichen Brechungsindizes für Fundamentalwelle und zweite Harmonische zu erhalten [YAR71]. Dennoch ist dies nicht in jedem beliebigen Medium möglich. Außerdem ist durch die materialbedingte Vorgabe des Einfallswinkels zwar eine Phasenanpassung möglich, oftmals dadurch jedoch nicht die Richtung der größten Nichtlinearität nutzbar.

Deshalb wird im folgenden Abschnitt eine andere Methode der Phasenanpassung beschrieben – die Quasiphasenanpassung (QPM). Diese Methode soll auch, wie in den späteren Kapiteln 6 und 7 beschrieben wird, für experimentelle Untersuchungen angewendet werden.

2.2.1 Quasi-Phasenanpassung und Kohärenzlänge

Die Methode der Quasiphasenanpassung wurde bereits 1962 durch Armstrong, Bloembergen & Co. vorgeschlagen [ARM62]. Seit den 90er Jahren sind QPM-Konverter realisiert und mittlerweile gibt es zahlreiche kommerzielle Anbieter [HCP07, RAI07, INO07]. Mittels Quasiphasenanpassung lassen sich Werte einstellen, welche im Allgemeinen durch Winkelphasenanpassung nicht erreicht werden können. So lässt sich durch QPM die Richtung der größten Nichtlinearität im Medium ausnutzen und sie ist für beliebige Wellenlängen im Transmissionsbereich des nichtlinear-optischen Mediums nutzbar, wobei sogar verschiedene nichtlineare Prozesse im gleichen nichtlinear-optischen Medium simultan kombiniert werden können.

Bei der QPM wird zwischen der Polarisierungswelle und der zweiten Harmonischen eine Wechselwirkung und damit ein Energietransfer nur im phasensynchronen Bereich zugelassen. Sobald dieser Bereich überschritten ist, würde sich nun im nächsten (destruktiven) Bereich die zuvor generierte zweite Harmonische wieder abbauen. Um dies zu verhindern, und ein weiteres Anwachsen der zweiten Harmonischen zu gewährleisten, wird im destruktiven Bereich entweder die Wechselwirkung zwischen den beteiligten Wellen abgeschaltet (periodische Polung von Quarzglas), oder der destruktive Bereich wird invertiert, d.h. es erfolgt ein

Vorzeichenwechsel der nichtlinearen Suszeptibilität zweiter Ordnung (periodische Polung von Kristallen).

Ist die Phasenanpassungsbedingung nicht exakt erfüllt, also $\Delta k \neq 0$, dann breitet sich die frequenzverdoppelte Welle mit anderer Geschwindigkeit aus, als die durch die Fundamentalwelle im Medium generierte Polarisierungswelle. Zwischen beiden kommt es zu einer Phasendifferenz, deren Größe sich mit der Ausbreitung entlang der Länge L ändert. Folglich oszilliert die Leistung, wie in Abbildung 2.3 schematisch dargestellt ist, sinusförmig zwischen der frequenzverdoppelten Welle und der Fundamentalwelle. Nach einer bestimmten Länge, der *Kohärenzlänge* l_c , erreicht die SHG-Intensität ihren maximalen Wert, um anschließend im Bereich der nächsten Kohärenzlänge wieder auf Null abzufallen.

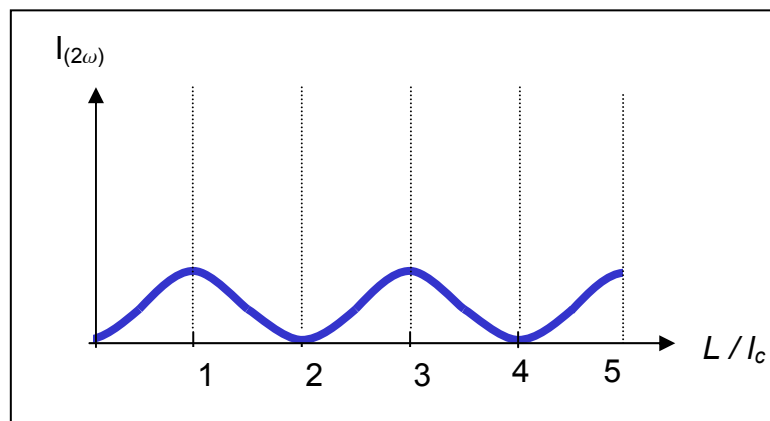


Abbildung 2.3 Intensität der zweiten Harmonischen im nichtlinear-optischen Medium in Abhängigkeit von der auf die Kohärenzlänge l_c normierten Ausbreitungslänge L .

Die Kohärenzlänge definiert sich über die Gleichung (2.37). Es gilt für Quasiphasenanpassung die Gleichung:

$$\Delta k = \frac{\pi}{l_c}. \quad (2.36)$$

Daraus folgt mit Gleichung (2.15) für die Kohärenzlänge $l_c \cdot \Delta k = \pi$, also

$$l_c = \frac{\lambda_\omega}{4 \cdot (n_{2\omega} - n_\omega)}. \quad (2.37)$$

Mit Hilfe dieser Formel können bei Kenntnis der Brechungsindizes die für Quasiphasenanpassung notwendigen Periodenlängen Λ berechnet werden, wobei für Λ gilt:

$$\Lambda = 2l_c. \quad (2.38)$$

Beispielsweise ergibt sich nach Gleichung (2.37) bei 1064 nm für die Kohärenzlänge in Herasil-Quarzglas ein Wert von $l_c = 24 \mu\text{m}$. Die hierbei verwendeten Werte für die jeweiligen Brechungsindizes von $n(1064) = 1,44972$ und $n(532) = 1,46081$ wurden nach der bekannten Sellmeier-Reihe (2.39) berechnet [GEC90], wobei für die Konstanten B_i und C_i die entsprechenden Herstellerangaben verwendet worden sind [HER05].

$$n^2(\lambda) = 1 + \sum_{i=1}^3 \frac{B_i \cdot \lambda^2}{\lambda^2 - C_i} = 1 + \frac{B_1 \cdot \lambda^2}{\lambda^2 - C_1} + \frac{B_2 \cdot \lambda^2}{\lambda^2 - C_2} + \frac{B_3 \cdot \lambda^2}{\lambda^2 - C_3} \quad (2.39)$$

2.2.2 Entwicklung des nichtlinearen Koeffizienten für QPM

Bei der Quasiphasenanpassung ist der nichtlineare Koeffizient in Ausbreitungsrichtung periodisch moduliert, also $d = d(z)$. Eine periodische Störung des nichtlinearen Koeffizienten d lässt sich gemäß einer Reihenentwicklung entsprechend eines Fourier-Ansatzes in folgender Form entwickeln:

$$d(z) = d_{Bulk} \cdot \sum_m -i \cdot a_m \cdot \exp\left[im \frac{2\pi}{\Lambda} z\right], \quad (2.40)$$

mit der Größe d_{Bulk} des nichtlinearen Konverters, der Periodenlänge Λ und dem Koeffizienten a_m der Ordnung m . Für $m = 1$, also QPM erster Ordnung, ändert sich das Vorzeichen des nichtlinearen Koeffizienten nach jeder Kohärenzlänge. Für $m = 2$, also QPM zweiter Ordnung, ändert sich das Vorzeichen des nichtlinearen Koeffizienten nach jeder zweiten Kohärenzlänge, usw.

Die Größe des Koeffizienten a_m lässt sich durch Ausnutzung der Orthogonalität der einzelnen Summenglieder wie folgt bestimmen [FEJ92, FEJ00]:

$$a_m = \frac{1}{\Lambda} \int_0^\Lambda i \cdot \frac{d(z)}{d_{Bulk}} \cdot \exp\left[-im \frac{2\pi}{\Lambda} z\right] \cdot dz \quad (2.41)$$

2.2.2.1 Änderung von $d(z)$ durch periodisches Umschalten

Zunächst soll für den Verlauf von $d = d(z)$ ein Vorzeichenwechsel von d_{Bulk} im Abstand einer halben Gitterperiode behandelt werden, was typischerweise in periodisch gepolten Kristallen der Fall ist.

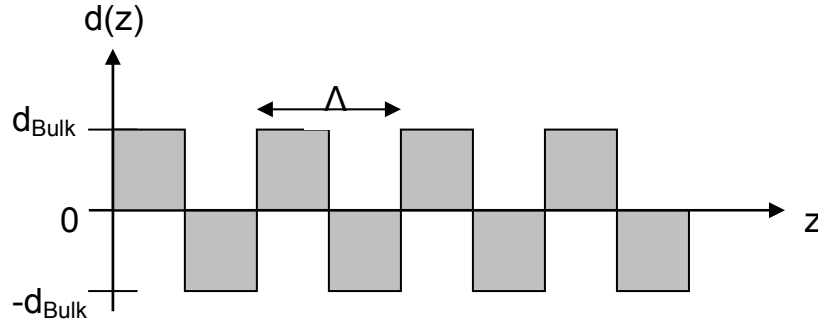


Abbildung 2.4 Modulation des nichtlinearen Koeffizienten $d(z)$ bei periodischem Vorzeichenwechsel: $d(z) = \pm d_{Bulk}$.

Aus Gleichung (2.41) folgt unter Zuhilfenahme der Bedingung (2.42) nach wenigen Schritten Gleichung (2.44), aus welchen sich die Werte für die Koeffizienten a_m der Ordnung m ergeben:

$$d(z) = d(z + \Lambda) = \begin{cases} d_{Bulk} & \text{für } 0 \leq z < \frac{\Lambda}{2} \\ -d_{Bulk} & \text{für } \frac{\Lambda}{2} \leq z < \Lambda \end{cases} \quad (2.42)$$

$$a_m = \frac{i}{\Lambda} \cdot \left[\int_0^{\frac{\Lambda}{2}} \exp\left[-im \frac{2\pi}{\Lambda} z\right] \delta z + \int_{\frac{\Lambda}{2}}^{\Lambda} -\exp\left[-im \frac{2\pi}{\Lambda} z\right] \delta z \right] \quad (2.43)$$

$$a_m = \frac{1}{m\pi} \cdot [1 - (-1)^m] \quad (2.44)$$

Für die ersten sechs Werte von m ist a_m in Tabelle 2.1 angegeben. Für jedes geradzahlige m ergibt sich bei einem Tastverhältnis von 50 % für a_m der Wert Null, wie aus Symmetriegründen aus Abbildung 2.4 anschaulich hervorgeht.

m	a_m
1	$2 / \pi$
2	0
3	$2 / 3 \pi$
4	0
5	$2 / 5 \pi$
6	0

Tabelle 2.1 Einige Koeffizienten a_m im periodisch gepolten Medium mit periodischem Vorzeichenwechsel: $d(z) = \pm d_{Bulk}$ (Tastverhältnis: 50 %).

Mit $d = a_m \cdot d_{Bulk}$ erhält man für $m = 1$: $d = \frac{2}{\pi} \cdot d_{Bulk}$. Gegenüber der ursprünglichen Phasenanpassung in Gleichung (2.25) verringert sich die Effizienz bei der Quasiphasenanpassung für die \pm -Modifikation von $d(z)$ um den Faktor 0,4.

$$\frac{\eta_{QPM}}{\eta_{SHG}} \sim d^2 = \left(\frac{2}{\pi}\right)^2 = 0,4 \quad (2.45)$$

2.2.2.2 Änderung von $d(z)$ durch periodisches Abschalten

Ein zum eben geschilderten Fall ganz ähnliches Ergebnis wird im folgenden Beispiel erhalten. Hierbei wird der Verlauf von $d = d(z)$ ebenfalls modifiziert, wobei sich jetzt im Abstand einer halben Gitterperiode $d(z)$ nicht von d_{Bulk} nach $-d_{Bulk}$ (\pm), sondern von $+d_{Bulk}$ nach 0 ($+ / 0$) umändert. Dieses periodische Abschalten von $d(z)$ lässt sich bei der Polung von Quarzglas realisieren.

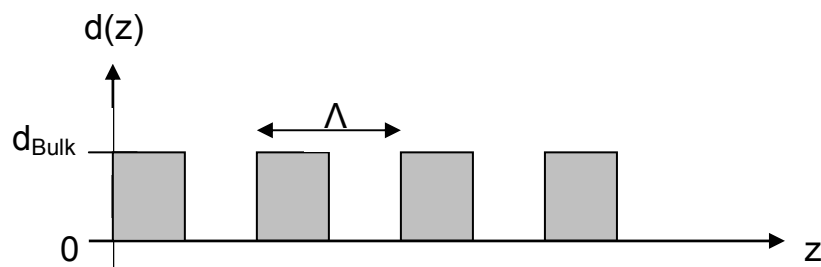


Abbildung 2.5 Modulation des nichtlinearen Koeffizienten $d(z)$ beim periodischen Abschalten: $d(z) = +d_{Bulk} / 0$.

Eine zu oben analoge Ableitung liefert für diesen Fall:

$$a_m = \frac{1}{2 \cdot m \pi} \cdot [1 - (-1)^m] \quad (2.46)$$

Auch hier sind wieder für die ersten sechs Werte von m die Koeffizienten a_m in einer Tabelle angegeben.

m	a_m
1	$1 / \pi$
2	0
3	$1 / 3 \pi$
4	0
5	$1 / 5 \pi$
6	0

Tabelle 2.2 Einige Koeffizienten a_m im periodisch gepolten Medium bei periodischem Abschalten: $d(z) = + d_{Bulk} / 0$ (Tastverhältnis: 50 %).

Für den Fall $m = 1$ erhält man jetzt: $d_{eff} = \frac{1}{\pi} \cdot d_{Bulk}$. Damit verringert sich für die +/-

Modifikation von $d(z)$ die Effizienz der Quasiphasenanpassung, verglichen mit der ursprünglichen Phasenanpassung aus Gleichung (2.25), um den Faktor 0,1.

$$\frac{\eta_{QPM}}{\eta_{SHG}} \sim d^2 = \left(\frac{1}{\pi}\right)^2 = 0,1 \quad (2.47)$$

2.2.3 Vergleich der unterschiedlichen Typen der Phasenanpassung

In Abbildung 2.6 sind die Auswirkungen der oben diskutierten Fälle „keine Phasenanpassung“, „ideale Phasenanpassung“, „QPM bei periodischem Vorzeichenwechsel von d “ und „QPM bei periodischem Abschalten von d “ auf die Intensität der zweiten Harmonischen graphisch dargestellt. Verglichen mit der idealen Phasenanpassung, welche beispielsweise durch Winkelphasenanpassung realisiert werden kann, sind unter Annahme der gleichen nichtlinearen Koeffizienten d die Intensitäten der zweiten Harmonischen für die beiden Fälle der QPM mit Vorfaktoren < 1 behaftet. Berücksichtigt man jedoch den bei der QPM existierenden

freien Parameter der Auswahl jeder beliebigen Richtung im nichtlinear-optischen Medium, und wählt man dann natürlich die Richtung mit der größten Nichtlinearität, so lassen sich mittels QPM ähnliche Intensitätswerte erzielen, wie auch bei Winkelphasenanpassung, und aufgrund der Nutzung dieser höheren Koeffizienten sogar übertreffen.

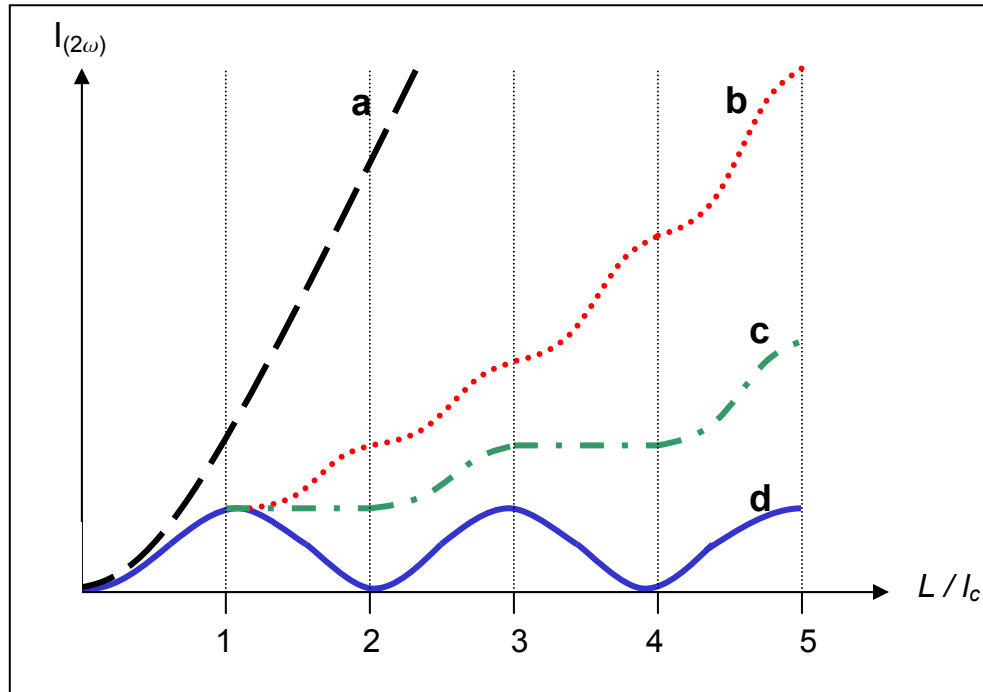


Abbildung 2.6 Auswirkung der Phasenanpassung auf das Wachstum der Intensität der zweiten Harmonischen im nichtlinear-optischen Medium in Abhängigkeit der normierten Ausbreitungslänge (schematisch).

a) ideale Phasenanpassung ($\Delta k=0$, z.B. Winkelphasenanpassung): $I_{2\omega} = a \cdot L^2$

b) QPM 1.Ordnung ($m=1$) bei Änderung des Vorzeichens von d_{Bulk} nach jeder

$$\text{Kohärenzlänge (+/-): } I_{2\omega} = \left(\frac{2}{\pi}\right)^2 \cdot a \cdot L^2$$

c) QPM 1.Ordnung ($m=1$) bei Zuschaltung und Abschaltung von d_{Bulk} nach jeder

$$\text{Kohärenzlänge (+/0): } I_{2\omega} = \left(\frac{1}{\pi}\right)^2 \cdot a \cdot L^2$$

d) keine Phasenanpassung.

2.2.4 Empfindlichkeit der Phasenanpassung auf die Variation verschiedener Größen

Um den praktischen Nutzen von QPM - Bauelementen richtig einschätzen zu können, ist die Einführung von Toleranzen für die Variation der letztendlich auf die Phasenanpassung und damit auf die Konversionseffizienz wirksamen Größen, z.B. der Wellenlänge λ , der Temperatur T oder der Gitterperiode Λ , erforderlich.

Als Ansatz dient eine Reihenentwicklung von Δk in Abhängigkeit ihrer beeinflussenden Größen bei kleinen Störungen:

$$\Delta k = \frac{\partial(\Delta k)}{\partial \lambda}(\lambda - \lambda_0) + \frac{\partial(\Delta k)}{\partial T}(T - T_0) + \frac{\partial(\Delta k)}{\partial \Lambda}(\Lambda - \Lambda_0) + \dots \quad (2.48)$$

Die durch die Variationen auftretenden Änderungen von Δk beeinflussen bei gegebener Länge L des QPM - Bauelementes den Phasenanpassungsfaktor aus

Gleichung (2.25): $\text{sinc}^2\left(\frac{\Delta k \cdot L}{2}\right)$.

Um ein gemeinsames und allgemeines Beurteilungskriterium für die Akzeptanzbandbreite bei der Phasenanpassung zu erhalten, wodurch auch verschiedene Bauelemente und Prozesse miteinander verglichen werden können, ist die *FWHM* - Akzeptanzbandbreite definiert worden, wobei die Abkürzung *FWHM* für *Full Width Half Maximum* steht. Folglich ist für Δk der Wert von Bedeutung, bei dem die sinc^2 -Kurve auf die Hälfte abgefallen ist.

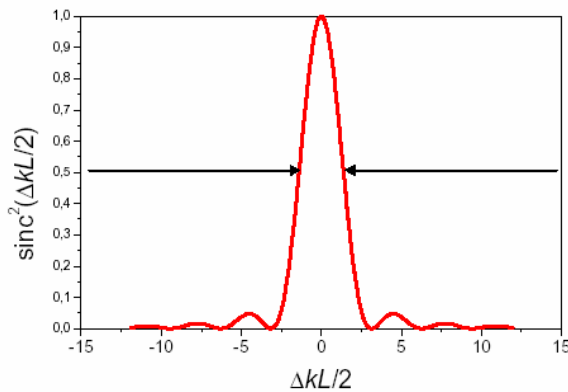


Abbildung 2.7
Effizienz des SHG-Prozesses in Abhängigkeit der Phasenanpassung, FWHM-Kriterium eingezeichnet.

Für Δk_{FWHM} ergibt sich daraus:

$$\Delta k_{FWHM} = 1,772 \cdot \frac{\pi}{L}. \quad (2.49)$$

Die in der Reihenentwicklung vorkommenden Terme können im Allgemeinen durch eine Größe ς ausgedrückt werden:

$$\Delta k = \frac{\partial(\Delta k)}{\partial \varsigma}(\varsigma - \varsigma_0). \quad (2.50)$$

Daraus ergibt sich die allgemein gültige Formel für die Akzeptanzbandbreite bei Phasenanpassung:

$$\Delta\zeta_{FWHM} = \frac{5,57}{L} \cdot \left| \frac{\partial \Delta k}{\partial \zeta} \right|^{-1}. \quad (2.51)$$

Dieses Resultat soll im folgenden Abschnitt für die Berechnung der Akzeptanzbandbreiten für Periode, Fundamentalwellenlänge und Temperatur verwendet werden.

2.2.4.1 Periodenfehler

Im Folgenden wird eine periodisch perfekte Domänenstruktur angenommen, welche allerdings eine geringfügig falsche Periode $\Lambda = 2 \cdot l_c$ aufweist. Besonders bei der Herstellung von Gitterelektroden auf der Oberfläche von Quarzglasfasern (Kapitel 7) wurden zuweilen solche geringfügigen Abweichungen von der exakten Periode festgestellt. Unter Zuhilfenahme der Gleichungen (2.15), (2.36) und (2.38) erhält man:

$$\frac{\partial(\Delta k)}{\partial \Lambda} = \frac{2\pi}{\Lambda^2} = \frac{\pi}{2l_c^2}. \quad (2.52)$$

Setzt man nun diesen Ausdruck in die allgemeine Formel (2.51) ein:

$$\Delta\Lambda_{FWHM} = \frac{11,14 \cdot l_c^2}{\pi \cdot L} = \frac{1,77 \cdot \Lambda}{N}, \quad (2.53)$$

wobei $N = L/l_c$ die Domänenanzahl in der Probe ist, so ergibt sich der folgende Zusammenhang:

$$\frac{N \cdot \Delta\Lambda_{FWHM}}{2} = 1,772 \cdot l_c. \quad (2.54)$$

Folglich ist $N \cdot \Delta\Lambda_{FWHM} = const.$, und es ergibt sich ein reziproker Zusammenhang zwischen Domänenanzahl und zulässigem Periodenfehler. Je größer die Periodenzahl ist, desto kleiner darf der Periodenfehler sein. Das folgende Rechenbeispiel soll diesen Zusammenhang verdeutlichen. Bei einer gegebenen Kohärenzlänge von $l_c = 24 \mu m$ und einer Gitterlänge von $2 cm$, was 830 Domänen entspricht, darf der Periodenfehler $\Delta\Lambda_{FWHM}$ höchstens $0,1 \mu m$ betragen.

2.2.4.2 Spektrale Bandbreite der Phasenanpassung

Für die Berechnung der Akzeptanzbandbreite der Fundamentalwellenlänge wird wieder der aus den Gleichungen (2.15), (2.36) und (2.38) abgeleitete Ansatz

$$\Delta k = k_{2\omega} - 2 \cdot k_{\omega} - \frac{2 \cdot \pi}{\Lambda} \text{ verwendet.}$$

Die spektrale Bandbreite der Fundamentalwellenlänge hat nur Einfluss auf die ersten beiden Terme auf der rechten Seite der Gleichung, nicht hingegen auf die Periodizität Λ :

$$\frac{\partial(\Delta k)}{\partial \lambda_{\omega}} = -\frac{4 \cdot \pi}{\lambda_{\omega}^2} \cdot n\left(\frac{\lambda_{\omega}}{2}\right) + \frac{4 \cdot \pi}{\lambda_{\omega}} \cdot \frac{\partial n\left(\frac{\lambda_{\omega}}{2}\right)}{\partial \lambda_{\omega}} + \frac{4 \cdot \pi}{\lambda_{\omega}^2} \cdot n(\lambda_{\omega}) - \frac{4 \cdot \pi}{\lambda_{\omega}} \cdot \frac{\partial n(\lambda_{\omega})}{\partial \lambda_{\omega}}. \quad (2.55)$$

Wird der so erhaltene Term in Gleichung (2.51) eingesetzt, so ergibt sich:

$$\Delta \lambda_{FWHM} = \frac{5,57 \cdot \lambda_{\omega}}{4 \cdot \pi \cdot L} \cdot \left| \frac{n(\lambda_{\omega}) - n\left(\frac{\lambda_{\omega}}{2}\right)}{\lambda_{\omega}} - \frac{\partial n(\lambda_{\omega})}{\partial \lambda_{\omega}} \right|_{\lambda_{\omega}} + \frac{1}{2} \cdot \frac{\partial n(\lambda_{\omega})}{\partial \lambda_{\omega}} \bigg|_{\frac{\lambda_{\omega}}{2}} \bigg|^{-1}. \quad (2.56)$$

Der Term $\frac{n(\lambda_{\omega}) - n\left(\frac{\lambda_{\omega}}{2}\right)}{\lambda_{\omega}}$ verschwindet für konventionelle Phasenanpassung, da für diesen Spezialfall $n(\lambda_{\omega}) = n(\lambda_{\omega}/2)$ gilt. Bei größeren Wellenlängen steigt die Akzeptanzbandbreite aufgrund der dann geringeren Dispersion an. Außerdem ist wieder eine inverse Abhängigkeit der Akzeptanzbandbreite von der Wechselwirkungslänge abzulesen.

Beispielsweise beträgt die nach Gleichung (2.56) berechnete Akzeptanzbandbreite $\Delta \lambda_{FWHM} = 2,26 \text{ nm}$. Die dafür angenommenen Zahlenwerte sind:

$$\lambda_{\omega} = 1064 \text{ nm}, \quad L = 20 \text{ mm}, \quad n(1064) - n(532) = 0,0111204, \quad \frac{\partial n(\lambda_{\omega})}{\partial \lambda_{\omega}} \bigg|_{1064} = -0,012 \mu\text{m}^{-1}$$

$$\text{und } \frac{\partial n(\lambda_{\omega})}{\partial \lambda_{\omega}} \bigg|_{532} = -0,047 \mu\text{m}^{-1}.$$

Die ebenfalls nach Gleichung (2.56) abgeschätzte Länge des QPM-Bauelementes dürfte maximal $11,3 \text{ cm}$ betragen, wenn als Bandbreite der Wert $\Delta \lambda = 0,4 \text{ nm}$ für den in Kapitel 6 verwendeten Nd-YAG Laser angenommen wird.

2.2.4.3 Temperatur-Bandbreite der Phasenanpassung

Unter erneuter Verwendung des aus den Gleichungen (2.15), (2.36) und (2.38) abgeleiteten Ansatzes $\Delta k = k_{2\omega} - 2 \cdot k_{\omega} - \frac{2 \cdot \pi}{\Lambda}$ erhält man durch Temperaturabstimmung eine Änderung von n , Λ und L . Unter Zuhilfenahme des linearen Ausdehnungskoeffizienten α

$$\frac{\partial L}{\partial T} = \alpha L, \quad (2.57)$$

und mit $\Delta n = n_2 - n_1$, folgt:

$$\frac{\partial}{\partial T}(\Delta k L) = L \cdot \frac{4\pi}{\lambda} \cdot \left(\frac{\partial \Delta n}{\partial T} + \Delta n \cdot \alpha \right). \quad (2.58)$$

Eingesetzt in Gleichung (2.51) ergibt sich daraus für die Bandbreite der Temperatur:

$$\Delta T_{FWHM} = \frac{0,4429 \cdot \lambda}{L^2} \cdot \left| \frac{\partial \Delta n}{\partial T} + \alpha \cdot \Delta n \right|^{-1}. \quad (2.59)$$

Zunächst ist wieder eine inverse Abhängigkeit der Akzeptanzbandbreite von der Wechselwirkungslänge abzulesen, also größere Gitterlängen erfordern ein geringeres ΔT_{FWHM} . Außerdem weisen Materialien mit geringerer Temperaturabhängigkeit eine größere Temperaturtoleranz auf. Wie bereits bei der spektralen Bandbreite, so steigt auch die Temperaturtoleranz bei größeren Wellenlängen an.

Zusammenfassend sind in diesem Kapitel die grundlegenden theoretischen Zusammenhänge für die Wechselwirkung elektromagnetischer Strahlung mit nichtlinear-optischen Medien betrachtet worden. Essentielle Gleichungen, welche in den nachfolgenden Kapiteln dieser Arbeit benötigt werden, wie z.B. die Gleichung für die Berechnung der Konversionseffizienz für SHG-Erzeugung, stehen nun zur Verfügung. Auch die Thematik der Quasiphasenanpassung wurde ausführlich behandelt, sodass nun in den folgenden Kapiteln QPM-Strukturen hergestellt und eingesetzt werden können.

3 Konzepte und Eigenschaften von thermisch gepoltem Quarzglas

In diesem Kapitel soll das grundsätzliche Prinzip des thermischen Polens von Quarzglas ausführlich behandelt werden. Die meisten Glaskomponenten, die in der Optik Verwendung finden, wie Linsen, Spiegel, Filter oder Prismen, verhalten sich generell passiv und optisch linear. Auch optische Fasern und Wellenleiter aus Quarzglas werden hauptsächlich zur linearen Licht- bzw. Signalübertragung eingesetzt.

Makroskopisch betrachtet besitzt amorphes Quarzglas (SiO_2) Inversionssymmetrie. Für die nichtlineare Polarisierung \vec{P} ergibt sich daraus ein verschwindender Suszeptibilitätstensor zweiter Ordnung, also $\chi^{(2)} = 0$:

$$\vec{P} = \vec{P}(\vec{E}) = \varepsilon_0 (\chi^{(1)} \vec{E} + \underbrace{\chi^{(2)} \vec{E} \vec{E}}_0 + \chi^{(3)} \vec{E} \vec{E} \vec{E} + \dots). \quad (3.1)$$

Damit verbundene nichtlineare Effekte zweiter Ordnung, wie z.B. die Erzeugung der zweiten Harmonischen, treten somit im Quarzglas naturgemäß nicht auf. Dennoch bietet sich im Prinzip die Möglichkeit, beispielsweise durch das thermische Polen, ein effektives $\chi^{(2)}$ dauerhaft in das Quarzglas einzubringen. Durch Gläser mit intrinsischer Nichtlinearität zweiter Ordnung ($\chi^{(2)}$ -Gläser) könnte der bisher überwiegend passive und lineare Anwendungsbereich deutlich erweitert werden. So wäre es möglich, spezielle nichtlinear-optische Prozesse, wie beispielsweise die oben genannte Erzeugung der zweiten Harmonischen, direkt im $\chi^{(2)}$ -Glas durchzuführen.

Die Vorgänge und die notwendigen Voraussetzungen dafür sollen in diesem Kapitel genauer erläutert werden.

3.1 Glasstruktur – Netzwerkhypothese

Für den im nachfolgenden Abschnitt detailliert beschriebenen Polungsprozess ist die verwendete Glassorte von erheblicher Bedeutung. Besonders die Konzentration der im Quarzglas enthaltenen Spurenelemente ist hierbei von signifikanter

Wichtigkeit. Deshalb soll in diesem Abschnitt zunächst kurz auf den prinzipiellen strukturellen Aufbau von Quarzglas, die Anlagerungsmöglichkeiten für Spurenelemente und die Beweglichkeit dieser Spurenelemente innerhalb des Quarzglases eingegangen werden.

Die von W. J. Zachariasen und B. E. Warren in den dreißiger Jahren aufgestellte Netzwerkhypothese brachte gegenüber dem bis dahin erreichten Kenntnisstand über die strukturelle Zusammensetzung der Gläser sprunghafte Fortschritte [ZAC32]. Damit werden als kleinste Bauelemente eines SiO_2 -Glases die $[\text{SiO}_4]$ -Tetraeder zugrunde gelegt. Solche Tetraeder sollen jedoch nicht wie in kristallisierten Verbindungen symmetrisch gleichmäßig miteinander zu einem räumlichen Netzwerk verknüpft sein, sondern unregelmäßig, wie in Abbildung 3.1 b) dargestellt ist [RÜS98].

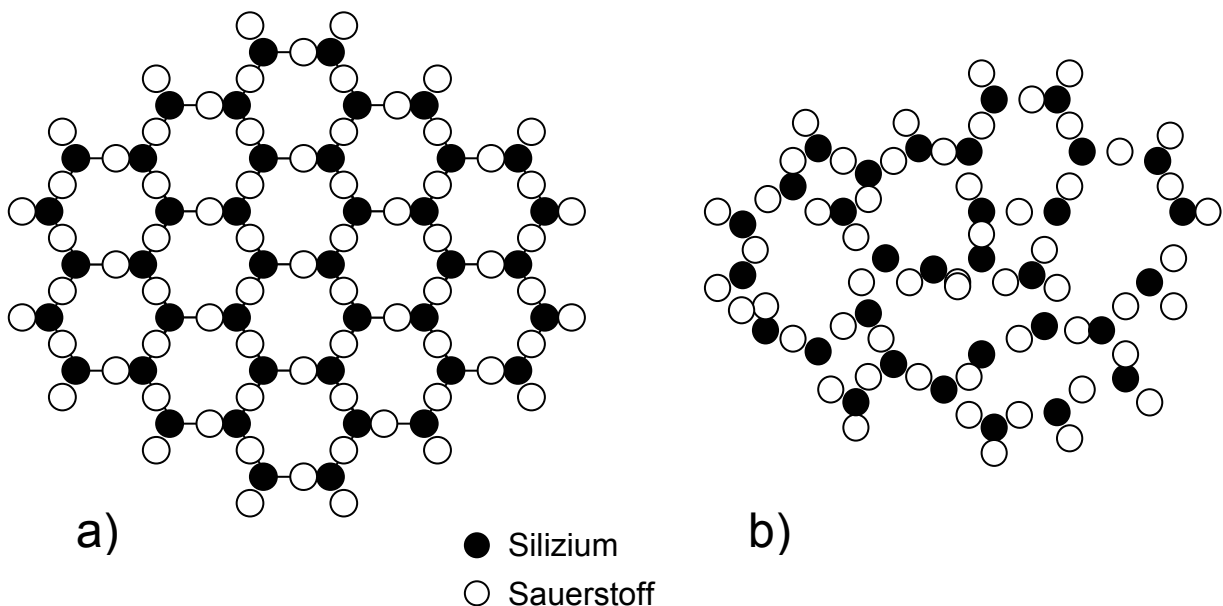


Abbildung 3.1 Schematische zweidimensionale Darstellung der Struktur von
a) kristallinem Quarz und b) reinem SiO_2 – Glas.
Das vierte mit Silizium koordinierte Sauerstoffatom liegt
jeweils oberhalb oder unterhalb der Zeichenebene.

Die in kristallinen Festkörpern typische, und durch den periodisch wiederholenden Aufbau gegebene Fernordnung ist im Glaszustand nicht mehr vorhanden [VOG92]. Abbildung 3.1 b) zeigt reines SiO_2 -Glas, in dem alle Sauerstoffionen an zwei Siliziumkationen gebunden sind, und gewissermaßen Brücken zwischen den Siliziumatomen bilden. Sie werden deshalb auch als Brückensauerstoffe bezeichnet. Nicht alle SiO_2 -Gläser sind hochrein. Viele besitzen Materialverunreinigungen, z.B. Spuren von sogenannten Netzwerkwandlern, wie Na^+ oder K^+ . Dadurch kommt es zur Aufspaltung von Sauerstoffbrücken, und die

großen Natriumionen finden in den nun größeren Hohlräumen Platz und lagern sich jetzt wie in Abbildung 3.2 zu sehen an die vorhandenen Trennstellensauerstoffe an.

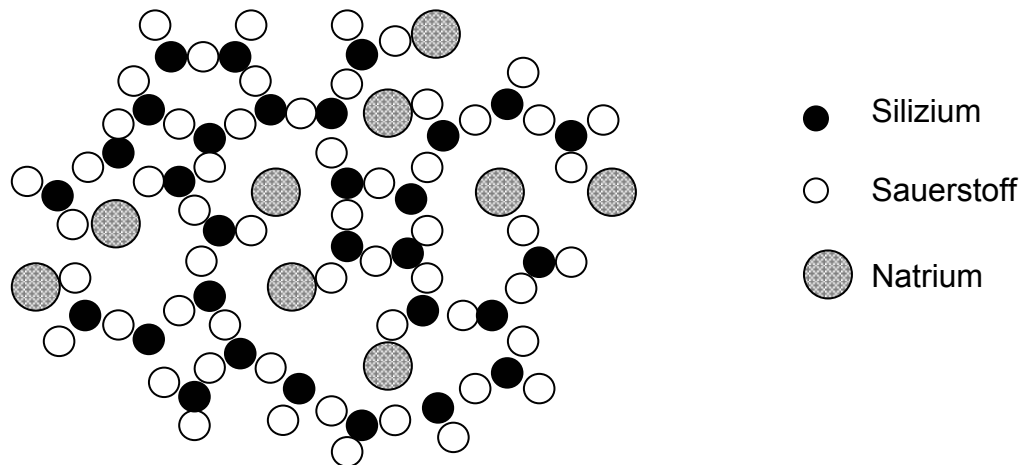


Abbildung 3.2 Anordnung der Atome oder Ionen im mit Na^+ -Ionen behafteten SiO_2 -Glas. Die großen Natriumionen finden nach Sauerstoffbrückensprengung in den größeren Hohlräumen Platz.

Die signifikantesten in amorphen SiO_2 vorkommenden Defektzentren sind die paramagnetischen Sauerstofffehlstellen (E'), die nichtbrückenbindenden Sauerstoff-Loch-Zentren (NBOH) und die Peroxid-Radikale (PO) [GRI81, LIJ01, KAM02]. Diese drei Defekte sind in Abbildung 3.3 dargestellt.

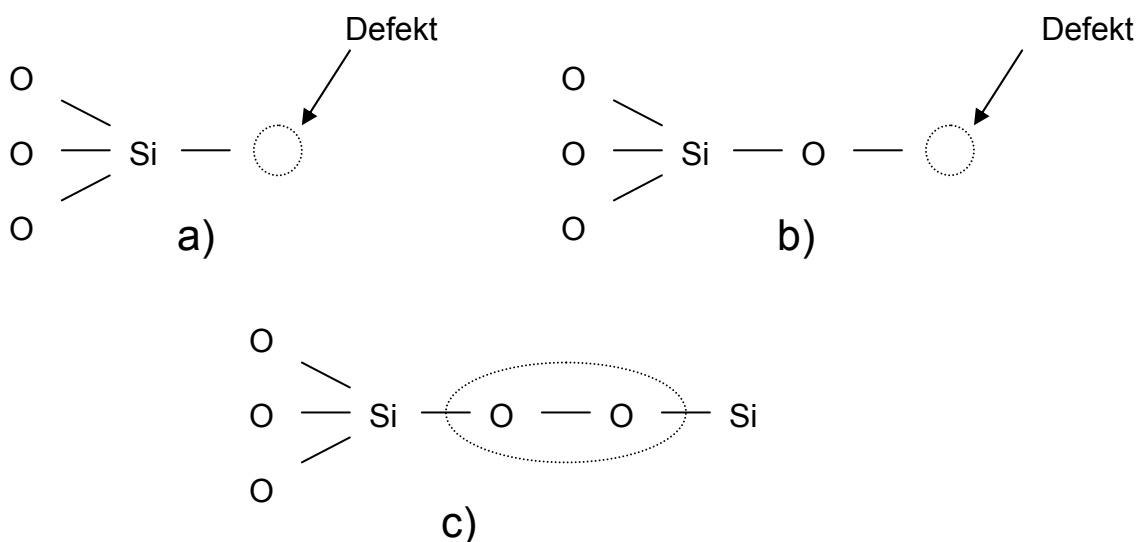


Abbildung 3.3 Schematische Darstellung für a) E' -Zentrum, b) NBOH und c) Peroxid-Radikale.

Durch Energiezufuhr, z.B. durch Erhitzen der Probe, steigt die Beweglichkeit der an die Defektzentren angelagerten Kationen, so dass sich diese nun innerhalb des Glasnetzwerkes frei bewegen können. Die sogenannte Jumpfrequenz ν steht in direktem Zusammenhang zur Beweglichkeit dieser Ionen. Sie ist das Produkt der Vibrationsfrequenz ν_0 (z.B. der Debye-Frequenz) des Festkörpers mit der Wahrscheinlichkeit der statistischen Fluktuation [LIA01]:

$$\nu = \nu_0 \cdot \exp\left(-\frac{\Delta G_m}{k \cdot T}\right). \quad (3.2)$$

Hierbei sind ΔG_m die Potenzialbarriere, T die absolute Temperatur und k die Boltzmannkonstante. Offensichtlich steigt die Jumpfrequenz, also die Beweglichkeit der vorhandenen Kationen im Glasnetzwerk, mit steigender Temperatur an. Um also bewegliche Ladungsträger zu bekommen, welche für den im nachfolgenden Abschnitt geschilderten Polungsprozess notwendig sind, muss die zu polende Probe erhitzt werden. Durch anschließendes Abkühlen der Probe sinkt die Beweglichkeit der Ladungsträger wieder ab, und die vorher beweglichen Ladungsträger können dadurch quasi *eingefroren* werden. Mit Hilfe der Jumpfrequenz, welche prinzipiell einer Diffusionskonstante entspricht, kann die Stabilität des nun vorliegenden Zustandes berechnet werden. Modellrechnungen von Le Calvez et al. haben ergeben, dass die so im SiO₂-Glas erzeugte Ladungsträgerverteilung bei Raumtemperatur über hunderte von Jahren hinweg stabil ist [CAL98].

3.2 Der Mechanismus des Polens

Durch das *Polen* bietet sich die Möglichkeit, eine effektive Suszeptibilität zweiter Ordnung $\chi^{(2)}_{\text{eff}}$ dauerhaft in das Glasmaterial einzubringen. Dabei wird in das Quarzglas ein permanentes elektrisches Feld eingebracht, wodurch es zum Bruch der zuvor dort vorhandenen Inversionssymmetrie kommt. Wie in Abbildung 3.4 dargestellt ist, unterscheidet man prinzipiell *drei* Arten der Polung: das *optische Polen*, das *UV-Polen* und das *thermische Polen*.

3.2.1 Optisches Polen

Das *optische Polen* wurde Mitte der 80er Jahre von Ulf Österberg und Walter Margulis vorgestellt [OES86]. Dabei wurden ps-Pulse eines mode-gelockten und gütegeschalteten Nd-YAG Lasers in eine Ge-dotierte Quarzglasfaser eingekoppelt. Nach einer Zeitdauer im Bereich von Minuten bis Stunden bildet sich ein schwaches SHG-Signal, welches im weiteren Zeitverlauf schnell anwächst und schließlich in einen Sättigungsbereich gelangt. Das *optische Polen* ist bisher ausschließlich in Ge-dotierten Fasern beobachtet worden. Weitere Defekte, wie z.B. eine H₂-Beladung oder das UV-Bestrahlen solcher Fasern, wirken sich steigend auf das erhaltene SHG-Signal aus [MAG04]. Aufgrund der bisher durch dieses Verfahren erreichten geringen $\chi^{(2)}$ -Werte von $\sim 10^{-14} \text{ m/V}$ und der Erfolge durch die anderen Polungsarten sind auf diesem Gebiet keine neueren Arbeiten mehr veröffentlicht worden.

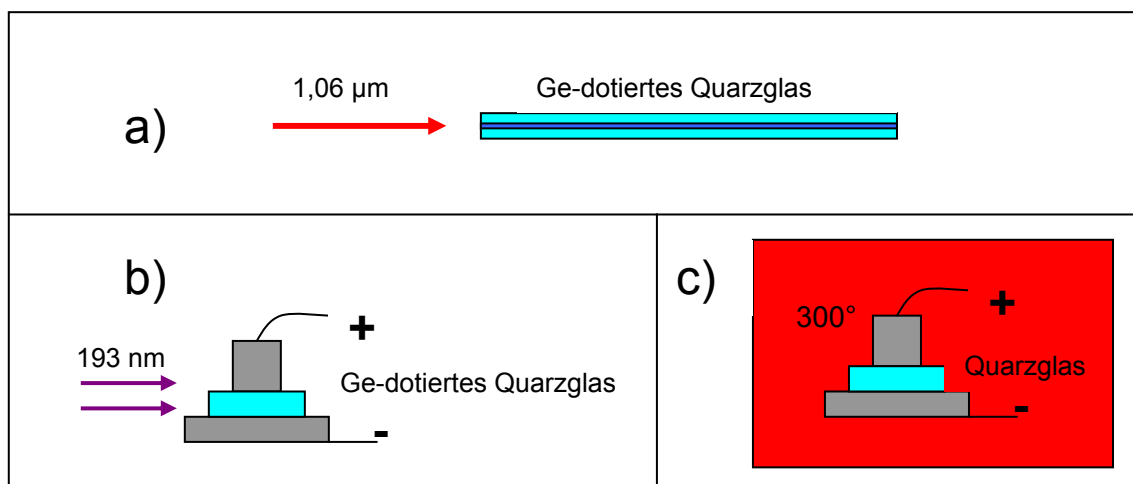


Abbildung 3.4 Schematische Abbildung der drei unterschiedlichen Polungsarten
 a) *optisches Polen*
 b) *UV-Polen*
 c) *thermisches Polen*.

3.2.2 UV-Polen

Beim *UV-Polen* wird an eine Ge-dotierte Quarzglasscheibe eine Hochspannung angelegt. Gleichzeitig erfolgt eine UV-Bestrahlung dieser Scheibe mit einer Wellenlänge von 193 nm . Durch diese Bestrahlung kommt es zur Formation von GeE'-Zentren, wobei auch freie Ladungsträger entstehen, welche dem angelegten elektrischen Feld folgen. Außerdem ist durch die UV-Bestrahlung der Probe eine Steigerung ihres $\chi^{(3)}$ -Wertes nachgewiesen worden [XU00]. Diese Steigerung wird auf die Bildung einer Kristallisation im Ge-dotierten Quarzglas durch den UV-Polungsprozess zurückgeführt [FUJ00]. Die durch den UV-Polungsprozess

erreichten Nichtlinearitäten zweiter Ordnung betragen bis zu 12 pm/V [MAG04]. Die Ursache des durch diesen Polungsprozess in das Glas induzierten $\chi^{(2)}_{\text{eff}}$ liegt zum einen im gesteigerten $\chi^{(3)}$ -Wert durch Kristallitbildung und zum anderen an der Bildung eines intrinsischen Raumladungsfeldes, wodurch die Ladungsträger bei der Formation der GeE'-Zentren frei werden. Polungsversuche mittels dieses Verfahrens sind von mehreren Forschungsgruppen unternommen worden. Dennoch wurden die quantitativ hohen Werte für die Nichtlinearität zweiter Ordnung nicht reproduziert, und können somit nicht als gesichert angesehen werden [MAG04, KAZ04].

3.2.3 Thermisches Polen

Die verbleibende und vielversprechendste Polungsart ist das *thermische Polen*. Bereits 1969 zeigte Kielich [KIE69] dass es möglich ist, in inversionssymmetrischen Medien durch Polung ein effektives $\chi^{(2)}$ zu erzeugen. Dabei legte er an dipolare und nichtdipolare Gase und Flüssigkeiten ein externes Gleichfeld an, wodurch deren Inversionssymmetrie gebrochen und SHG nachgewiesen wurde.

1975 berichtete Bethea [BET75] von einer *electric-field-induced SHG* in Glasscheiben. In diesem Fall erfolgte die Generierung der SHG durch die Kopplung des $\chi^{(3)}$ -Koeffizienten mit dem angelegten Gleichfeld E_0 . Beim Abschalten des angelegten Gleichfeldes E_0 verschwand auch die SHG - Erscheinung.

Ein neuer Meilenstein auf dem Gebiet der Polung wurde 1991 von einem Forscherteam aus Albuquerque (USA) gesetzt. Myers et al. [MYE91] zeigten, dass durch *thermisches Polen* eine Nichtlinearität zweiter Ordnung im Quarzglas erzeugt und konserviert werden kann. Weiterhin wurde herausgefunden, dass diese Nichtlinearität durch das Erhitzen der Probe auf $\sim 250^\circ\text{C}$ wieder ausgelöscht werden kann. Die Stabilität der so im Quarzglas erzeugten Nichtlinearität zweiter Ordnung ist bei Raumtemperatur über einen Zeitraum von drei Jahren beobachtet worden und zeigte während dieses Zeitraumes keine Änderungen [KUA05, STR05]. Wie bereits im vorherigen Abschnitt erwähnt wurde, haben Modellrechnungen ergeben, dass die erzeugte Nichtlinearität zweiter Ordnung sogar über viele hundert Jahre hinweg stabil ist [MAG05, CAL98].

Obwohl diese Nichtlinearität zuverlässig und stabil hergestellt werden kann, wurde ihre Ursache lange Zeit nicht vollständig verstanden. Zwei Modelle sind zur Erklärung vorgeschlagen worden. Das eine Modell spricht von einer Re-Orientierung und Ausrichtung der Glasbindungen oder Dipole durch das angelegte elektrische Feld, wodurch die Inversionssymmetrie in der Glasmatrix gebrochen wird [LIU94]. Im anderen Modell spielt die Präsenz eines *Raumladungsfeldes* eine

zentrale Rolle [KAZ94]. Das *eingefrorene* elektrische Raumladungsfeld E_0 kreiert dabei zusammen mit dem im Quarzglas vorhandenen $\chi^{(3)}$ eine effektive Nichtlinearität zweiter Ordnung:

$$\chi^{(3)} \cdot \vec{E}\vec{E}\vec{E} \rightarrow \chi^{(3)} \cdot \vec{E}_0\vec{E}\vec{E} \rightarrow (\chi^{(3)}\vec{E}_0) \cdot \vec{E}\vec{E} \rightarrow \chi^{(2)_{eff}} \cdot \vec{E}\vec{E}. \quad (3.3)$$

In aktuellen Veröffentlichungen wird auch aufgrund neuer Forschungsergebnisse meist nur noch das letztere Modell verwendet [Kapitel 6, KUD03, KUO05].

Der *Polungsprozess* soll hier anhand dieses zweiten Modells ($\chi^{(3)+}$ eingefrorenes Raumladungsfeld $\Rightarrow \chi^{(2)_{eff}}$) beschrieben werden und ist zur Verdeutlichung in Abbildung 3.5 dargestellt.

1. Beim *thermischen Polen* wird die Quarzprobe auf eine notwendige Temperatur von ca. 300 °C erhitzt. Durch diese Energiezufuhr sind die auch im hochreinen Material vorhandenen Kationen, besonders Na^+ [LAN79, ALL99, FAC01], nicht mehr fest im Glasnetzwerk verankert, sondern können sich nun frei innerhalb des Netzwerkes bewegen.
2. Wird nun an die Quarzprobe eine Hochspannung angelegt, so bewegen sich die in der Probe befindlichen Kationen in Richtung Kathode. Sie folgen dem von außen einwirkendem elektrischen Feld solange, bis ein durch sie entsprechendes Gegenfeld innerhalb der Probe aufgebaut ist. Somit entsteht in Anodennähe eine Kationenverarmungsschicht – die sogenannte *depletion-layer* – welche typischerweise eine Ausdehnung von einigen μm besitzt [FRA05]. Die gesamte von außen angelegte Spannung fällt über dieser *depletion-layer* ab.
3. Zwischen der *depletion-layer* und der Anode existiert nun ein sehr großes statisches elektrisches Feld, dessen Wert mit ca. 10^7 V/cm in der Nähe der Durchschlagsfeldstärke für Quarzglas liegt [ALL98, KAZ94, HER05, LIA01, MUK94].
4. Anschließend wird die Probe wieder auf Raumtemperatur abgekühlt, sodass die Bewegung der Kationen zum Stillstand kommt. Außerdem wird die von außen angelegte Hochspannung abgeschaltet. Das innerhalb der Probe existierende große statische Feld bewirkt eine Ionisierung des Glases in der Anodenregion, so dass sich eine positive Ladungsschicht bildet, wodurch das interne große statische Feld nach außen abgeschirmt ist. Im Quarzglas verbleibt eine positive-negative Schicht-Raumladung.
5. In der Probe existiert nun innerhalb der *depletion-layer* ein *eingefrorenes* elektrisches Feld E_0 , welches zusammen mit dem vorhandenen $\chi^{(3)}$ als effektive Nichtlinearität zweiter Ordnung wirkt.

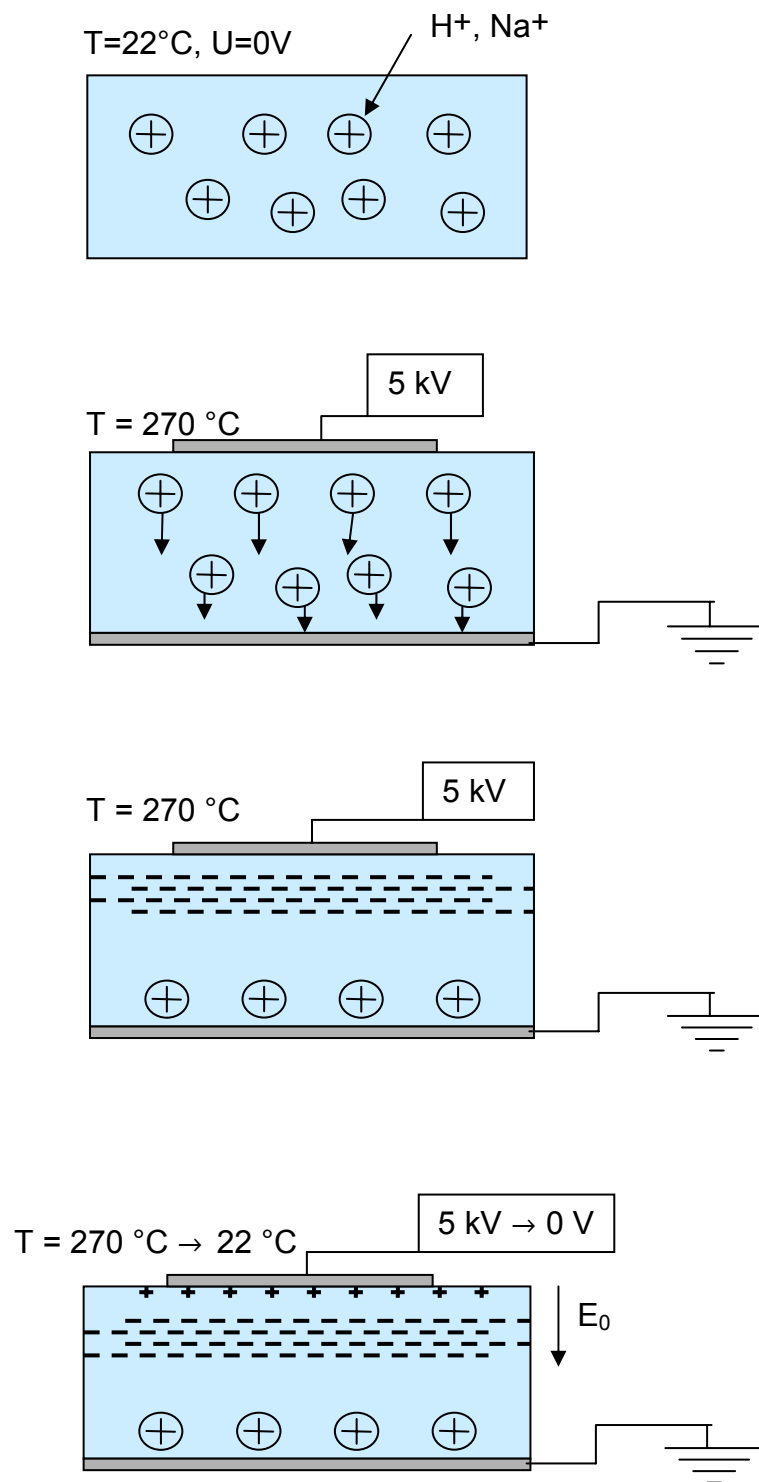


Abbildung 3.5 Prozessverlauf beim thermischen Polen in Quarzglas.

3.3 Berechnung der Tiefenausdehnung der *depletion-layer*

Für die in den Kapiteln 6 und 7 durchgeführten experimentellen Polungsuntersuchungen an planaren Quarzproben, besonders jedoch an Quarzglasfasern, ist die Kenntnis der Tiefenausdehnung der *depletion-layer* von essentieller Bedeutung. Deshalb soll im Folgenden die Tiefenausdehnung dieser Kationenverarmungsschicht berechnet werden. Dazu wird ein eindimensionales, stationäres Modell verwendet. Dadurch können die Prozessverläufe für nicht allzu große Polungsdauern gut beschrieben werden [KUM05, KUO05, MUK94].

Vor dem Polungsprozess sind die Ladungen im Material gleichverteilt, und die Anzahl der positiven Ladungen ist gleich der der negativen Ladungen. Die positiven Ladungen, also Kationen wie z.B. Na^+ , H^+ , Li^+ , K^+ oder Ca^+ , sind unter bestimmten Voraussetzungen (hohe Temperaturen und Spannungen) beweglich und damit gezielt verschiebbar, während die „negativen Rümpfe“ ortsfest bleiben [KRI88].

3.3.1 Tiefenausdehnung bei direkter Elektrodenkontaktierung der Probe

Zunächst sollen die Anode und die Kathode direkt an der Materialoberfläche anliegen. Nach dem im vorangegangenen Abschnitt beschriebenen Polungsprozess stellt sich die Ladungsverteilung in der Probe wie in Abbildung 3.6 dar.

In unmittelbarer Nähe der Anode, von $y = 0$ bis $y = l_0$, entsteht die *depletion-layer* [FRA05, AN05]. Im Bereich zwischen $y = l_0$ bis $y = d$ ist das elektrische Feld gleich null.

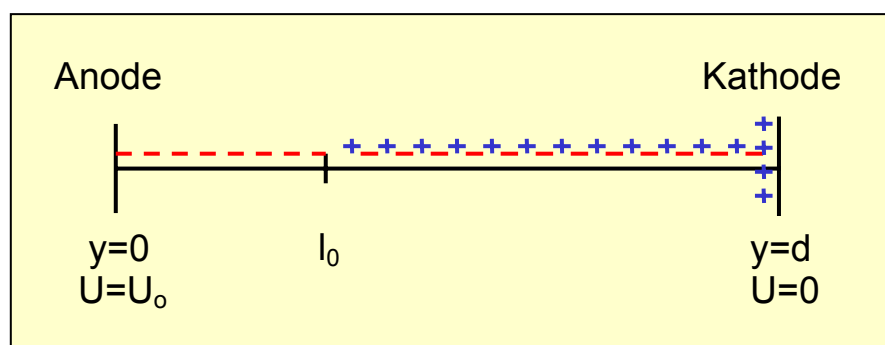


Abbildung 3.6 Ladungsverteilung in der Quarzglasprobe nach dem Polungsprozess.

Die durch den Polungsprozess verschobenen positiven Ladungen befinden sich dann an der anderen Oberfläche $y = d$ und werden dort durch eintretende Elektronen der Kathode neutralisiert.

Den Ausgangspunkt für die Berechnung der Tiefe der Verarmungsschicht bildet die aus den Maxwellgleichungen abgeleitete eindimensionale Poissonsche Potenzialgleichung:

$$\frac{\partial^2 U}{\partial^2 y} = -\frac{1}{\varepsilon} \cdot \rho . \quad (3.4)$$

U ist hierbei das elektrostatische Potenzial, ε ist die Dielektrizitätskonstante und ρ ist die Ladungsdichte, welche sich nach Gleichung (3.5) aus der Elementarladung e und der Anzahl der beweglichen Kationen N zusammensetzt

$$\rho = -e \cdot N . \quad (3.5)$$

Unter Zuhilfenahme von Gleichung (3.6) welche den Zusammenhang zwischen der Feldstärke E und dem elektrostatischen Potenzial U definiert

$$E = -\text{grad } U , \quad (3.6)$$

ergibt sich

$$\frac{\partial E}{\partial y} = \frac{1}{\varepsilon} \cdot \rho . \quad (3.7)$$

Mit $\rho(y) = \rho_0$ innerhalb der *depletion-layer* ergibt sich für die elektrische Feldstärke E

$$E = \frac{1}{\varepsilon} \cdot \rho_0 \cdot (l_0 - y) . \quad (3.8)$$

Die elektrische Feldstärke E fällt von der Anode beginnend linear über der *depletion-layer* ab. Der übrige Bereich der Probe zwischen l_0 und d ist frei von Raumladungen, weshalb hierfür gilt:

$$\frac{\partial E}{\partial y} = 0, \quad E = \text{const.} = 0 . \quad (3.9)$$

Die Gesamtspannung U_0 , welche von außen an die Probe der Dicke d angelegt wird, fällt komplett über der *depletion-layer* ab:

$$U_0 = - \int_0^{l_0} E(y) dy = - \int_0^{l_0} \frac{\rho_0}{\varepsilon} (l_0 - y) dy = \frac{-\rho_0}{2 \cdot \varepsilon} \cdot l_0^2, \quad (3.10)$$

woraus sich für die Tiefenausdehnung der *depletion-layer* folgender bekannter Zusammenhang ergibt [HIP53, ALL98]

$$l_0 = \sqrt{\frac{2 \cdot \varepsilon \cdot U_0}{-\rho_0}}. \quad (3.11)$$

Zur numerischen Abschätzung von l_0 wird für $U_0 = 5 \text{ kV}$, ein Wert mit dem in den folgenden Experimenten gearbeitet wurde, eingesetzt. Für ε wird der Wert $3,8 \cdot \varepsilon_0$ verwendet, welcher für die in den experimentellen Untersuchungen verwendeten Glastypen (z.B. Herasil oder HSQ100) gilt [HER05]. ε_0 ist hierbei die Vakuum-Dielektrizitätskonstante.

Die Teilchenanzahl der Kationen, welche in den verwendeten Quarzgläsern lediglich als Spurenelemente enthalten sind, liegt den Herstellerangaben zufolge zwischen $1\text{-}10 \text{ ppm}$ [HER05, SCH07]. Der verwendete Zahlenwert von $N = 6,6 \cdot 10^{22} \text{ Teilchen/m}^3$ bezieht sich auf einen Spurenelementwert von 3 ppm . Die damit berechnete Tiefenausdehnung der *depletion-layer* beträgt $l_0 = 5,6 \text{ }\mu\text{m}$. Wie aus Gleichung (3.11) zu erkennen ist, und auch in Kapitel 6 noch experimentell gezeigt wird, ist die Tiefenausdehnung der *depletion-layer* von der angelegten Spannung U_0 und von der Anzahl der in der Probe vorhandenen beweglichen Kationen N abhängig.

3.3.2 Tiefenausdehnung bei vorhandenem Luftspalt zwischen Elektrode und Probe

Für eine in Kapitel 7 vorkommende, besondere Faserstruktur soll nun noch die folgende Problematik behandelt werden, bei der eine Elektrode nicht direkt an der Probenoberfläche anliegt.

Wie in Abbildung 3.7 dargestellt ist, befindet sich in diesem Fall zwischen der Elektrode, beispielsweise der Kathode, und der Probe ein Luftspalt der Dicke x . Dadurch erfährt die Normalkomponente der elektrischen Feldstärke E einen Sprung, welcher vom Verhältnis der ε -Werte der beteiligten Medien abhängt, also in diesem Falle von den Medien Quarzglas und Luft.

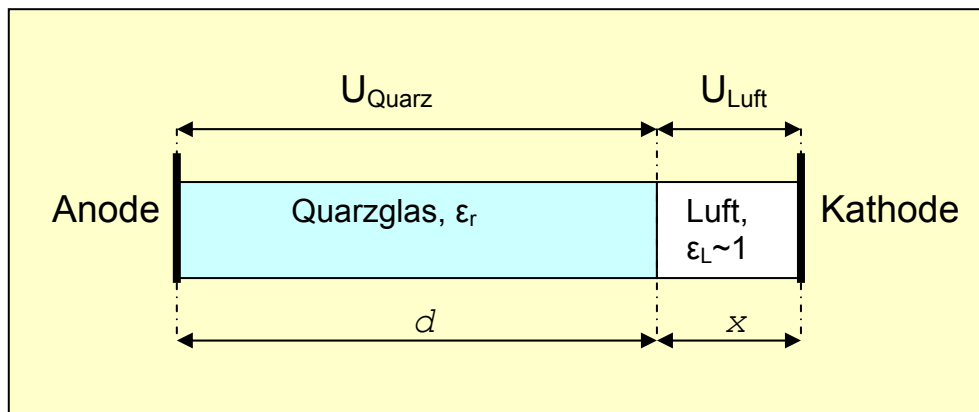


Abbildung 3.7 Schematische Darstellung der kontaktierten Probe mit vorhandenem Luftspalt zwischen Probe und Kathode. d : Dicke der Quarzprobe, x : Dicke des Luftspaltes.

Berücksichtigt man nun die entsprechenden ϵ -Werte, die Dicke der Quarzprobe d , die Dicke des Luftspaltes x und die angelegte Gesamtspannung U_0 , so ergeben sich für die elektrischen Feldstärken im Luftraum und im Quarzglas folgende Gleichungen:

$$E_{\text{Luft}} = \frac{U_0}{d - x \cdot \left(\frac{\epsilon_r - 1}{\epsilon_r} \right)} \quad (3.12)$$

$$E_{\text{Quarz}} = \frac{U_0}{\epsilon_r \cdot d - (\epsilon_r - 1) \cdot x} \quad (3.13)$$

Mit Kenntnis der Dicke d der Quarzprobe und der Dicke x des Luftspaltes können nun die Spannungen U_{Quarz} bzw. U_{Luft} berechnet werden, welche jeweils über den einzelnen Medien abfallen. Dieser Zusammenhang ist in Abhängigkeit von x in Abbildung 3.8 dargestellt. Für die von außen angelegte Gesamtspannung U_0 ist wieder 5 kV eingesetzt worden, ϵ_r beträgt 3,8 und die Dicke der Quarzprobe beträgt 50 μm .

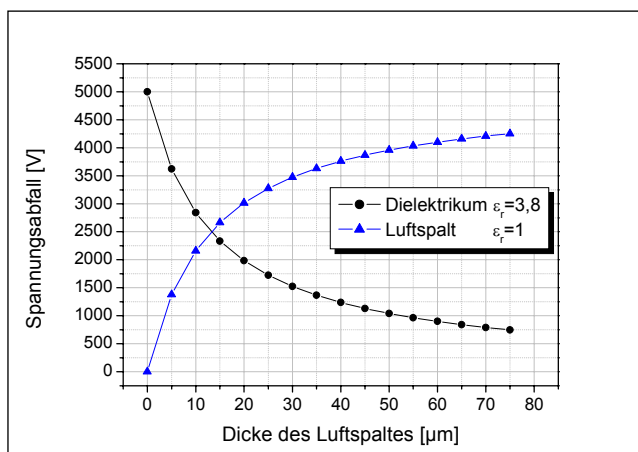


Abbildung 3.8

Spannungsanstieg im Luftspalt (U_{Luft} , blaue Kurve) und damit einhergehender Spannungsabfall im Quarzglas (U_{Glas} , schwarze Kurve) in Abhängigkeit von der Dicke x des Luftspaltes.

Es ist deutlich zu erkennen, dass bereits bei sehr geringen Luftspalten zwischen der Elektrode und der Quarzprobe ein erheblicher Teil der angelegten Gesamtspannung über dem Luftspalt abfällt. Für den hier angenommenen Fall ist aus Abbildung 3.8 zu erkennen, dass bereits bei einer Luftspaltdicke von $14\ \mu\text{m}$ nur noch die Hälfte der angelegten Gesamtspannung U_0 über der Quarzprobe abfällt.

Da nach Gleichung (3.11) eine direkte Proportionalität zwischen U_0 und der Tiefe der *depletion-layer* l_0 vorliegt, wirkt sich der durch den Luftspalt x bedingte Spannungsabfall in der Quarzprobe sofort auch auf l_0 aus. Dieser Sachverhalt ist in Abbildung 3.9 in Abhängigkeit der Dicke x des Luftspaltes dargestellt. Für die Berechnungen wurden die analogen Zahlenwerte aus Abschnitt 3.3.1 verwendet, wobei nun für U_0 der in Abbildung 3.8 dargestellte, zur jeweiligen Luftspaltdicke x gehörende Wert U_{Quarz} eingesetzt worden ist.

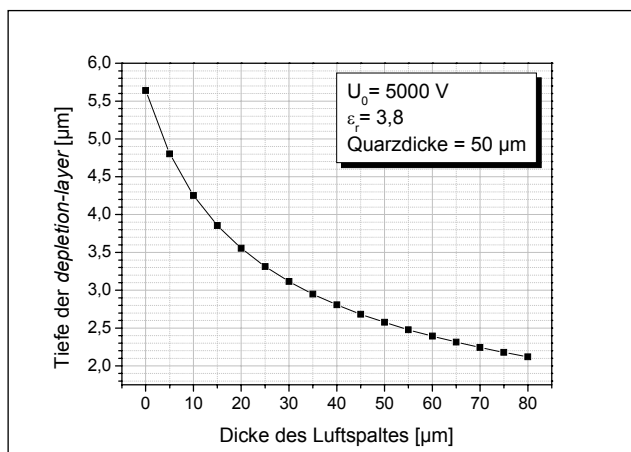


Abbildung 3.9

Abhängigkeit der Tiefenausdehnung der depletion-layer von der Dicke des Luftspaltes zwischen Kathode und Quarzprobe.

Wie bereits nach Gleichung (3.11) zu erwarten war, ist in Abbildung 3.9 deutlich zu erkennen, dass sich die *depletion-layer* bei wachsendem Luftspalt, und demzufolge geringerer über der Probe abfallender Spannung U_{Quarz} rasch empfindlich verkleinert.

Um also die Tiefenausdehnung der *depletion-layer* nicht zusätzlich zu vermindern, ist darauf zu achten, dass die Elektroden in jedem Falle direkt an der Probenoberfläche anliegen.

3.4 Auswirkungen des Polungsprozesses auf die Symmetrieverhältnisse im Quarzglas

Wie bereits zu Beginn dieses Kapitels erläutert wurde, besitzt amorphes Quarzglas Inversionssymmetrie, und damit keinen Suszeptibilitätstensor zweiter Ordnung, also $\chi^{(2)} = 0$ (Gleichung (3.1)). Erst durch die Kombination eines *eingefrorenen* elektrischen Raumladungsfeldes E_0 mit dem im Quarzglas vorhandenen $\chi^{(3)}$ wird eine effektive Nichtlinearität zweiter Ordnung $\chi^{(2)}_{eff}$ generiert (Gleichung (3.3)). Auf die durch den Polungsprozess innerhalb der *depletion-layer* entstehenden veränderten Symmetrieverhältnisse, und die damit verbundenen Möglichkeiten für die SHG-Erzeugung im Quarzglas soll in diesem Abschnitt genauer eingegangen werden. Dies macht eine *tensorielle* Betrachtung der in Kapitel 2 *skalar* behandelten Gleichungen (2.1) und (2.25) erforderlich.

3.4.1 Suszeptibilitätstensor dritter Ordnung bei isotropen Medien

Da ja nach Gleichung (3.3) das erzeugte $\chi^{(2)}_{eff}$ durch die Kombination aus Raumladungsfeld E_0 und dem im Quarzglas vorhandenem $\chi^{(3)}$ generiert wird, soll in diesem Abschnitt kurz auf die Struktur dieses $\chi^{(3)}$ – Tensors eingegangen werden. Im Allgemeinen kann der Suszeptibilitätstensor dritter Ordnung für isotrope Medien, also auch für Quarzglas, durch Gleichung (3.14) beschrieben werden:

$$\chi_{ijkl} = a \delta_{ij} \delta_{kl} + b \delta_{ik} \delta_{jl} + c \delta_{il} \delta_{kj} \quad (3.14)$$

In ausführlicher Schreibweise ist dies ein Tensor mit 3^4 , also mit 81 Einträgen. Von diesen 81 Einträgen sind 21 Elemente nicht *null*. Lediglich *drei* dieser 21 nicht *null* – Elemente sind voneinander unabhängig.

$$\left(\begin{array}{ccc} \begin{pmatrix} a+b+c & 0 & 0 \\ 0 & a & 0 \\ 0 & 0 & a \end{pmatrix} & \begin{pmatrix} 0 & b & 0 \\ c & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} & \begin{pmatrix} 0 & 0 & b \\ 0 & 0 & 0 \\ c & 0 & 0 \end{pmatrix} \\ \begin{pmatrix} 0 & c & 0 \\ b & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} & \begin{pmatrix} a & 0 & 0 \\ 0 & a+b+c & 0 \\ 0 & 0 & a \end{pmatrix} & \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & b \\ 0 & c & 0 \end{pmatrix} \\ \begin{pmatrix} 0 & 0 & c \\ 0 & 0 & 0 \\ b & 0 & 0 \end{pmatrix} & \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & c \\ 0 & b & 0 \end{pmatrix} & \begin{pmatrix} a & 0 & 0 \\ 0 & a & 0 \\ 0 & 0 & a+b+c \end{pmatrix} \end{array} \right)$$

Abbildung 3.10 Ausführliche Darstellung des $\chi^{(3)}$ – Tensors für isotrope Medien.

Außerdem gelten für die Einträge dieses Tensors folgende Zusammenhänge [BUT90]:

$$\begin{aligned}
 xxxx &= yyyy = zzzz \\
 yyzz &= zzyy = zzxx = xxzz = xxyy = yyxx \\
 yzyz &= zyzy = zxzx = xzxx = xyxy = yxyx \\
 yzzz &= zyyz = zxxz = xzzx = xyxz = yxxz \\
 xxxx &= xxyy + xyxy + xyyx
 \end{aligned}$$

Diese Kenntnisse über die Struktur des $\chi^{(3)}$ – Tensors werden in Abschnitt 3.4.3 zur Berechnung des Suszeptibilitätstensor zweiter Ordnung herangezogen.

3.4.2 Suszeptibilitätstensor zweiter Ordnung bei gepoltem Quarzglas

Gepolte Quarzglas-Proben gehören zur ∞mm Punkt-Gruppe [CHE03, BUT90]. Aus diesem Grund verhält sich das durch den Polungsprozess induzierte $\chi^{(2)}_{\text{eff}}$ so, wie der Suszeptibilitätstensor zweiter Ordnung der $4mm$ oder $6mm$ Symmetriegruppe mit $d_{15} = d_{31}$. Der Suszeptibilitätstensor zweiter Ordnung kommt nur in Kristallklassen ohne Symmetriezentrum vor und hat im Allgemeinen $3^3 = 27$ Einträge. Aufgrund der intrinsischen Permutationssymmetrie dieses Tensors – bei SHG gilt $\omega_1 = \omega_2 = \omega$, und somit ist die Suszeptibilität invariant gegen Vertauschung der zu ω_1 und ω_2 gehörenden Indizes – kann er in kontrahierter Darstellung zur Matrixform auf 18 Elemente reduziert werden. Abbildung 3.11 zeigt sowohl den Suszeptibilitätstensor zweiter Ordnung für die Symmetriegruppe $4mm$ und $6mm$, als auch seine kontrahierte Matrix-Darstellung. Zur Ableitung der kontrahierten Darstellung wurde die Notation und die Bildungsvorschrift aus [BUT90] verwendet.

$$\begin{bmatrix}
 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & xzy & xyz & 0 & 0 \\
 0 & 0 & 0 & xxz & xzx & 0 & 0 & 0 & 0 \\
 zxx & zxx & zzz & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0
 \end{bmatrix}$$

$$\overbrace{\begin{bmatrix}
 0 & 0 & 0 & 0 & d_{15} & 0 \\
 0 & 0 & 0 & d_{15} & 0 & 0 \\
 d_{31} & d_{31} & d_{33} & 0 & 0 & 0
 \end{bmatrix}}^{d_{15} = d_{31}}$$

Abbildung 3.11 Suszeptibilitätstensor zweiter Ordnung für die Symmetriegruppen $4mm$ und $6mm$ und daraus abgeleitete kontrahierte Matrix-Darstellung.

Im folgenden Abschnitt wird der durch den Polungsprozess entstehende Suszeptibilitätstensor zweiter Ordnung aus dem im Abschnitt 3.4.1 dargestellten $\chi^{(3)}$ -Tensor und dem damit wechselwirkenden Raumladungsfeld E_0 berechnet. Der dabei als Ergebnis erhaltene Suszeptibilitätstensor zweiter Ordnung sollte mit dem in Abbildung 3.11 dargestellten Tensor übereinstimmen.

3.4.3 Auswirkungen der Polarisationsseigenschaften der Fundamentalwelle auf die Effizienz und die Polarisationsseigenschaften der zweiten Harmonischen

Um die Vorgänge bei der Erzeugung der zweiten Harmonischen im gepolten Quarzglas genau zu verstehen, wurde dafür unter Zuhilfenahme der Software *MATHEMATICA* der SHG-Prozess analytisch simuliert. Dabei kann durch die Variation der eingestrahltten Polarisationsrichtung der durch Polung im Quarzglas generierte effektive Suszeptibilitätstensor zweiter Ordnung charakterisiert, und mit verschiedenen Kristallklassen typischer $\chi^{(2)}$ -Kristalle verglichen werden. Die daraus gewonnenen Erkenntnisse sollen in den Kapiteln 6 und 7 bei den experimentellen Untersuchungen angewendet werden. Besonders für die Konversionseffizienz in gepolten Quarzglasfasern ist es wichtig zu wissen, ob das eingeprägte elektrische Feld senkrecht oder parallel zur Faserachse, und damit zur Ausbreitungsrichtung der Fundamentalwelle, ausgerichtet ist.

Der oben beschriebene Suszeptibilitätstensor dritter Ordnung für isotrope Medien, welcher auch für Quarzglas gültig ist, wird mit dem einfallenden Gesamtfeld, bestehend aus dem statischen elektrischen Feld und dem einfallenden Wellenfeld der Fundamentalwelle, verrechnet. Die Charakterisierung der Fundamentalwelle erfolgt durch frei wählbare Parameter. So kann sowohl ihr Polarisationszustand durch die Winkel φ und ψ , als auch der Einfallswinkel θ – für die Ausbreitung der

Fundamentalwelle in z-Richtung ist $\theta = \frac{\pi}{2}$ – eingestellt werden.

Polarisationszustand	ψ	φ
linear	0	beliebig
linear, parallel	0	0
linear, senkrecht	0	$\pi / 2$
zirkular	$\pi / 2$	$\pi / 4$
elliptisch	sonst	sonst

Tabelle 3.1 Charakterisierung des Polarisationszustandes der Fundamentalwelle durch die beiden Winkel φ und ψ .

In Tabelle 3.1 sind die zu den entsprechenden Winkeln φ und ψ zugehörigen Polarisationszustände angegeben. Aus diesen Vorgaben können der entstehende Polarisierungsvektor und daraus jeweils in Abhängigkeit des Polarisationszustandes der Fundamentalwelle die Intensität und der Polarisationszustand der SHG-Welle berechnet werden. Ein Simulationsergebnis besagt, dass die Polarisation der SHG vom Einfallswinkel θ unabhängig ist. Außerdem unterscheidet sich die Phasenverschiebung von s- und p-Komponente der SHG von derjenigen der Fundamentalwelle, d.h. die SHG ist im Allgemeinen anders polarisiert. Wichtige Spezialfälle des Zusammenhanges der Polarisationen der beiden Wellen sind in Tabelle 3.2 zusammengefasst. Bemerkenswert ist, dass die SHG sowohl bei linear senkrechter, als auch bei linear parallel polarisierter Fundamentalwelle immer linear senkrecht polarisiert ist. Außerdem ist die Intensität der SHG für den s-s Fall um fast eine Größenordnung höher als für den p-s Fall.

Polarisation der Fundamentalwelle	Polarisation der SHG	Intensität der SHG
linear, parallel	linear, senkrecht	$A^2 / 2$
linear, senkrecht	linear, senkrecht	$9 A^2 / 2$
linear, beliebig	linear, beliebig	$A^2 / 2 \leq \text{Int} \leq 9 A^2 / 2$
zirkular	zirkular	A^2

Tabelle 3.2 *Durch Simulationsrechnungen erhaltene Abhängigkeit des Polarisationszustandes und der Intensität der SHG vom Polarisationszustand der Fundamentalwelle.*

Die Einträge des in Abbildung 3.11 dargestellten und für transparente isotrope Medien gültigen Suszeptibilitätstensors zweiter Ordnung, welcher für gepoltes Quarzglas mit dem Suszeptibilitätstensor dritter Ordnung über Gleichung (3.15) verknüpft ist, unterscheiden sich um den Faktor 3 [KIE69, KAZ94]. Dies wird durch die Gleichungen (3.16 – 3.18) verdeutlicht.

$$\chi_{ijk}^{(2)}(-2\omega; \omega, \omega) = \chi_{ijkl}^{(3)}(-2\omega; \omega, \omega, 0) \cdot E_l \quad (3.15)$$

$$\chi_{3333}^{(3)} = 3 \cdot \chi_{3113}^{(3)} \quad (3.16)$$

$$\chi_{333}^{(2)} = 3 \cdot \chi_{311}^{(2)} \quad (3.17)$$

$$d_{33} = 3 \cdot d_{31} \quad (3.18)$$

Bei s-s-Konversion wirkt als nichtlinearer Koeffizient d_{33} , und bei p-s-Konversion wirkt d_{31} . Nach Gleichung (2.25) geht der nichtlineare Koeffizient d quadratisch in die SHG-Intensität ein. Unter Beachtung von Gleichung (3.18) folgt somit:

$$\frac{I_{2\omega}^{ss}}{I_{2\omega}^{ps}} \approx \left(\frac{d_{33}}{d_{31}} \right)^2 = \frac{3^2}{1^2} = 9. \quad (3.19)$$

Die Intensität der SHG unterscheidet sich in Abhängigkeit von der Polarisationsrichtung der Fundamentalwelle und damit vom Wirken des jeweiligen Tensorelementes d_{31} bzw. d_{33} um den Faktor 9, genau wie in Tabelle 3.2 als Simulationsergebnis beschrieben. Die gleichen Ergebnisse werden bei der Verwendung von Kristallen der $4mm$ oder $6mm$ Symmetriegruppe (Abb. 3.11) erhalten, was die Aussage von [CHE03], dass gepoltes Quarzglas zur ∞mm Punkt-Gruppe gehört und dass sich das induzierte $\chi^{(2)}_{eff}$ wie der Suszeptibilitätstensor zweiter Ordnung der $4mm$ oder $6mm$ Symmetriegruppe mit $d_{15} = d_{31}$ verhält, bestätigt.

Auch experimentell wurde der Zusammenhang aus Gleichung (3.18) in Abhängigkeit der Polarisationsrichtung der Fundamentalwelle mehrfach nachgewiesen [Kapitel 6.6, KAZ94, CHE03, CHE05]. Die Übereinstimmung der durch die Simulation und durch das Experiment [Kapitel 6.6] erhaltenen Ergebnisse unterstützen das oben geschilderte Modell der Entstehung eines $\chi^{(2)}_{eff}$ gemäß der Gleichungen (3.3) und (3.15).

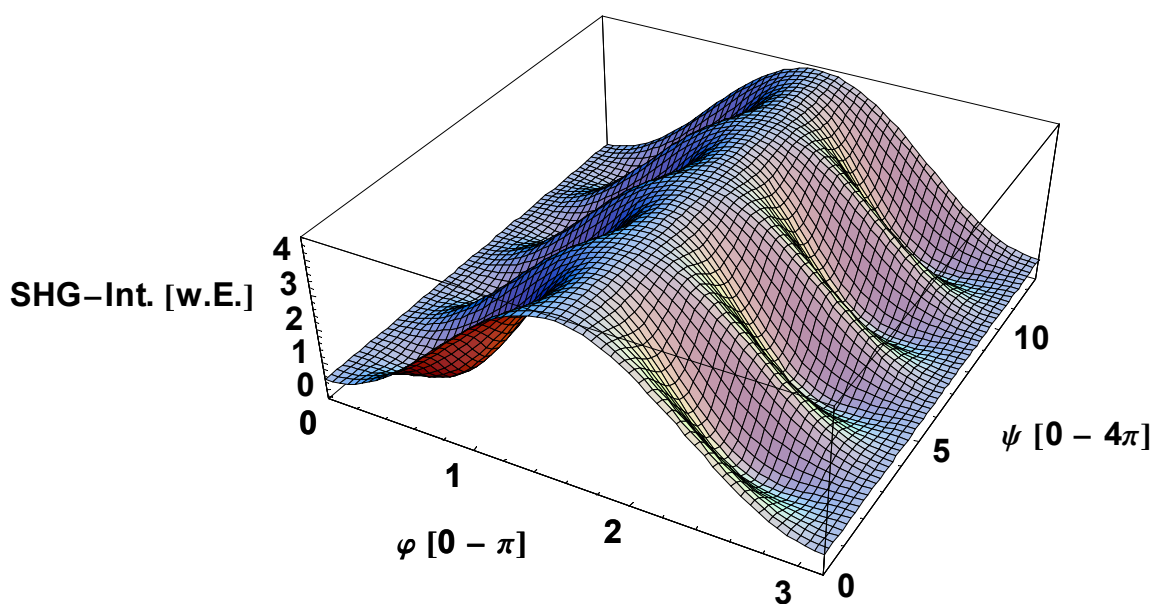


Abbildung 3.12 Abhängigkeit der SHG-Intensität vom Polarisationszustand der Fundamentalwelle, gekennzeichnet durch die Winkel φ und ψ .

Die Intensitätsabhängigkeit der SHG vom Polarisationszustand der Fundamentalwelle ist in Abbildung 3.12 verdeutlicht. Bei beliebiger linearer Polarisation der Fundamentalwelle schwankt die Intensität der SHG zwischen den Intensitätswerten der beiden Spezialfälle linear senkrecht und linear parallel, wobei diese Werte genau für $\varphi = 0$ und $\varphi = \frac{\pi}{2}$ erhalten werden. Für den Fall einer zirkular polarisierten Fundamentalwelle ergibt sich ebenfalls eine zirkular polarisierte SHG gleicher Drehrichtung. Ihre Intensität ist doppelt so hoch wie die des oben erwähnten p -s Falles.

Als ein weiteres Ergebnis liefert die Simulation eine Abhängigkeit der SHG-Intensität vom Einfallswinkel θ . Eine Änderung des Einfallswinkels θ beeinflusst die Wechselwirkung der Fundamentalwelle mit dem für die SHG-Erzeugung wirkendem Tensorelement. Der Einfallswinkel, welcher bei schrägem Einfall in das Quarzglas durch das Snelliussche Brechungsgesetz entsprechend modifiziert wird, geht dabei mit $\sin^2(\theta)$ in die SHG-Intensität ein. In Abbildung 3.13 ist diese Abhängigkeit graphisch dargestellt.

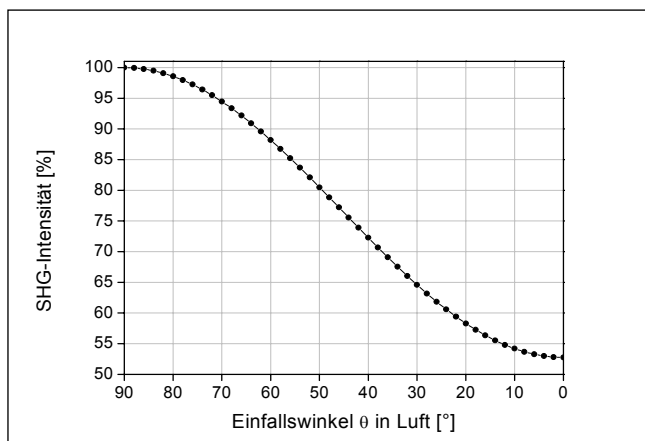


Abbildung 3.13

Durch Simulationsrechnungen ermittelte Abhängigkeit der SHG-Intensität vom Einfallswinkel der Fundamentalwelle, wobei 90° dem senkrechten Einfall entspricht.

Der senkrechte Einfall wird hierbei durch $\theta = \frac{\pi}{2}$ definiert. Durch Abweichung vom senkrechten Einfall wird die SHG-Intensität wegen der durch den sich verändernden Einfallswinkel nun auch verändernden Tensorkomponenten reduziert. Bei Ausbreitung der Fundamentalwelle entlang der z-Richtung – also für senkrechten Einfall – und gleichzeitiger Polarisation entlang des statischen Feldes ist die SHG-Intensität maximal und hat die gleiche Polarisation wie die Fundamentalwelle (s-s). Die Abhängigkeit der SHG-Intensität vom Einfallswinkel θ konnte experimentell bestätigt werden [COR03, STR05]. Dieses Ergebnis besagt, dass beispielsweise in einer optischen Quarzglasfaser, das eingebrachte elektrische Feld senkrecht zur Faserachse, also zur Ausbreitungsrichtung der Fundamentalwelle, ausgerichtet sein

muss, um eine Wechselwirkung mit den maximalen Tensorelementen des in der Faser generierten Suszeptibilitätstensors zu erreichen.

Mit den in diesem Kapitel gewonnenen Erkenntnissen zum Polungsprozess, zur Tiefenausdehnung der *depletion-layer*, zur Auswirkung eines Luftspaltes zwischen Elektrode und Quarzglasmaterial und zur Ausrichtung des eingebrachten elektrischen Feldes bezüglich der Ausbreitungsrichtung der Fundamentalwelle sind nun die Voraussetzungen für die experimentellen Polungsuntersuchungen geschaffen. Dazu sollen im folgenden Kapitel zunächst die notwendigen Messplätze für die Polung der Proben und für den optischen Nachweis des generierten Suszeptibilitätstensors zweiter Ordnung vorgestellt werden.

4 Messplätze

Zur Untersuchung des thermischen Polens ist einerseits eine Polungsanordnung (Polungsmessplatz) und andererseits ein Nachweismessplatz zur Detektion der Effizienz bei der Erzeugung der zweiten Harmonischen erforderlich. Diese dazu aufgebauten Anordnungen sollen in den folgenden Abschnitten beschrieben werden.

4.1 Aufbau des Polungsmessplatzes

Neben dem Verständnis der grundlegenden Mechanismen für den Polungsprozess bildete der Aufbau einer Polungsapparatur die Voraussetzung für nachfolgende Experimente.

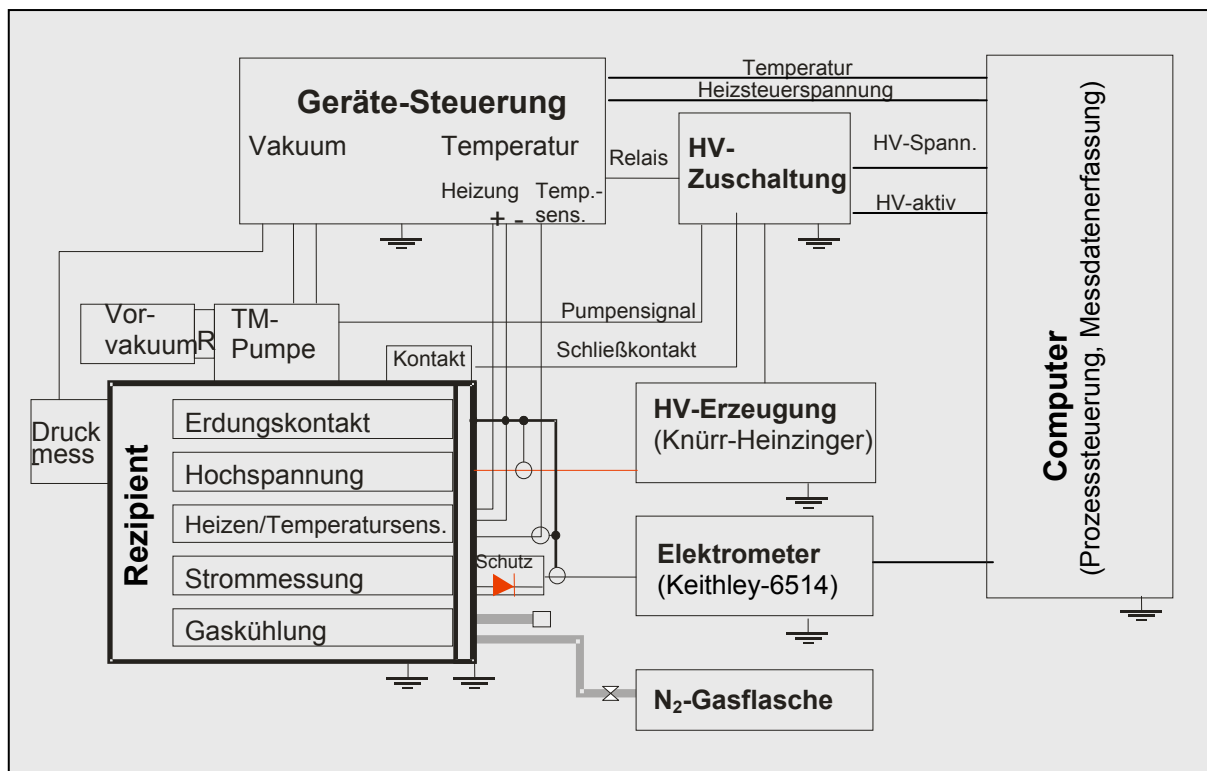


Abbildung 4.1 Schematische Abbildung des Gesamtaufbaus der Polungsapparatur.

Der Polungsmessplatz muss alle notwendigen Anforderungen für den Polungsprozess vollständig erfüllen, und sein Gesamtaufbau ist in Abbildung 4.1 schematisch dargestellt.

Auf die wesentlichen Bestandteile des Polungsmessplatzes wird im Folgenden genauer eingegangen. Dazu gehören die Vakuumerzeugung, die Temperaturregelung, die Hochspannungserzeugung, die Strommessung und die Messdatenerfassung.

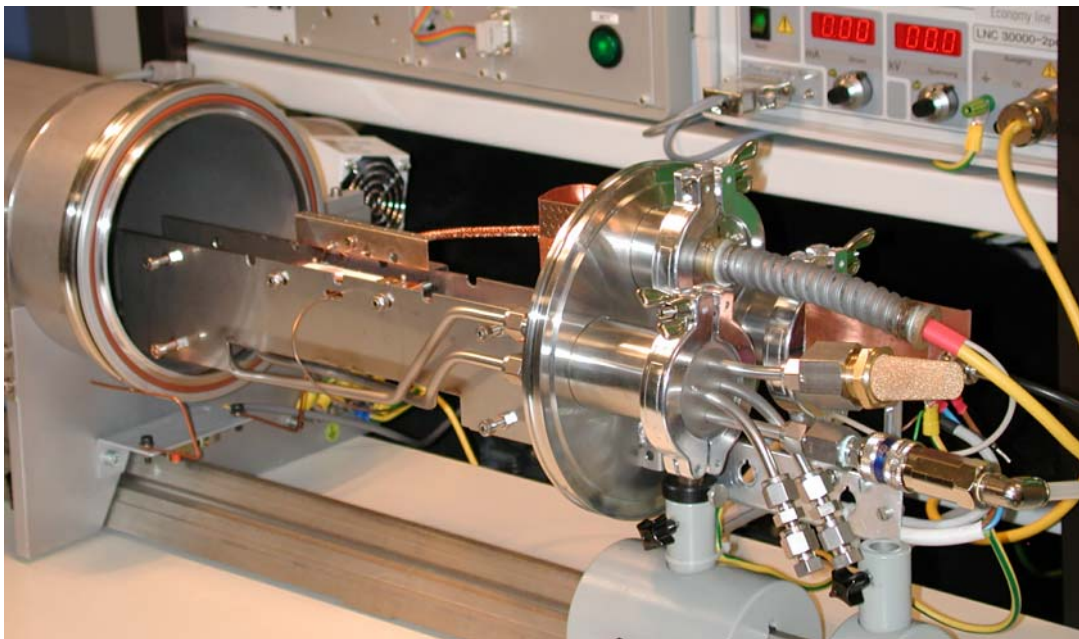


Abbildung 4.2 *Geöffneter Rezipient mit Probestisch. Seitlich sieht man die Zuführungen für die Hochspannung, die Strommessung, die Temperatursteuerung und die Stickstoff-Gasströmungskühlung.*

4.1.1 Vakuumerzeugung

Zur Vermeidung elektrischer Durchbrüche durch die umgebende Atmosphäre wurden die Polungsexperimente im Vakuum durchgeführt. Zur Vakuumerzeugung wurde ein Rezipient mit angeschlossener Turbomolekularpumpe des Typs TMH 071 P der Firma PFEIFFER-VACUUM verwendet. Mit dieser Pumpe konnte im Rezipienten einen Druck von 10^{-5} mbar, also der Bereich des Hochvakuums erreicht werden. Die damit erhaltenen mittleren freien Weglängen betragen einige 100 m und überschreiten somit deutlich die Abmessungen des Rezipienten. Das von der Turbomolekularpumpe benötigte Vorvakuum wurde mit einer Drehschieberpumpe des Typs DUO 2,5 A, ebenfalls von der Firma PFEIFFER-VACUUM, erzeugt. Vom gleichen Hersteller ist auch das Druckmessinstrument, die *Compact Full Range*

Gauge PKR 251. Es besteht aus zwei separaten Messsystemen: einem Wärmeleitungsvakuummeter (Pirani), welches einen gasdruckabhängigen Metallfadenwiderstand misst, und einem Kaltkathodenmesssystem (Penning), welches nach dem Prinzip der selbständigen Gasentladung arbeitet. Durch die Verknüpfung dieser beiden Messsysteme untereinander wird durch das PKR 251 ein Messbereich von 1000 mbar bis 10^{-9} mbar abgedeckt. Alle bisher beschriebenen Komponenten sind mittels des Anzeige- und Bediengerätes DCU der Firma PFEIFFER-VACUUM kontrolliert und gesteuert worden.

4.1.2 Temperaturregelung

Zur Beheizung der Proben wurde ein Proben Tisch für den Rezipienten entwickelt, welcher mit einer Widerstandsheizung (bis 64 W) aufgeheizt und mit einer Stickstoff-Gasströmung (Kühlrohr) abgekühlt werden kann. Um die Temperatur des Proben Tisches auch sicher auf die zu polende Probe zu übertragen, und diese dadurch thermisch von der Umgebung zu isolieren, war es erforderlich geeignete Wärmeschilder zu konstruieren und einzusetzen. Erst durch diese Maßnahme konnte sichergestellt werden, dass die gemessenen Temperaturen des Proben Tisches auch tatsächlich an der Probe realisiert werden. Proben Temperaturen bis $300 \text{ }^{\circ}\text{C}$ sind somit mühelos einstellbar. Die Temperaturen, sowohl am Proben Tisch, als auch an der Probe selbst, wurden mit einem PT100 - Sensor gemessen. Durch die elektronische Verknüpfung eines Programmreglers GRADO 964 der Firma HENGSTLER mit integrierter Regelelektronik, dem PT100 - Sensor des Proben Tisches und der Widerstandsheizung kann die vorgewählte Temperatur gehalten oder definiert programmgesteuert verändert werden. Am Ende des Polungsprozesses sorgt die Stickstoff-Gasströmungskühlung für eine rasche Abkühlung der Probe bei anliegender Hochspannung unter Vakuumbedingungen. Dadurch wird die Zeitdauer bis zum Einfrieren der Raumladungen deutlich von ca. zwei Stunden auf zehn Minuten verkürzt.

4.1.3 Hochspannungserzeugung

Die für den Polungsprozess notwendige Hochspannung liefert eine Hochspannungsquelle des Typs LNC der Firma KNÜRR-HEINZINGER. Aus sicherheitstechnischen Aspekten wurde die Anlage als „Prüfplatz mit zwangsläufigem Berührungsschutz“ nach DIN VDE 104 gestaltet und ist mit einer Kontrollelektronik für Zu- und Abschaltung und selbsttätiger Erdungsbrücke ausgestattet. Mit dieser Hochspannungsquelle lassen sich Spannungen bis zu 8 kV generieren.

4.1.4 Strommessung im Sub-pA-Bereich

Die Messung des Polungsstromes dient zur Kontrolle des Polungsprozesses und liefert wichtige Hinweise über die Polbarkeit der Proben.

Strommessungen im Sub-pA-Bereich sind anspruchsvoll und erfordern spezielle Techniken. Als Messgerät wird ein Elektrometer vom Typ 6514 SYSTEM ELECTROMETER der Firma KEITHLEY eingesetzt, welches Ströme bis in den 10 fA - Bereich messen kann. Eine spezielle Schutzschaltung, bestehend aus einem Widerstand und zwei Dioden [KEI98], verhindert bei möglichen elektrischen Durchbrüchen in der Probe einen Durchschlag der Hochspannung auf den Messgeräteeingang. Der Rezipient sichert die Abschirmung gegen äußere Störfelder. Das Druckmessinstrument, die Temperaturregelung, die Hochspannung und mechanische Erschütterungen influenzieren zeitlich schwankende Ladungen im Elektrometeranschluss, die eine Messung des Polungsstromes im pA-Bereich erschweren bzw. unmöglich machen können. Eine Verringerung solcher Einflüsse wurde durch eine Abschirmung der Hochspannungszuführung und des Elektrometeranschlusses bis zum Probentisch erreicht (starre, hochohmige und hochvakuumgerechte Ausführung). Um Störungen der Strommessung durch das Druckmessinstrument PKR 251 zu vermeiden, kann dieses während der Messung separat abgeschaltet werden. Dadurch werden die parasitären Stromflüsse reduziert, und es können Ströme bis in den Sub-pA-Bereich gemessen werden.

4.1.5 Messdatenerfassung

Die während des Polungsprozesses anfallende Menge an zum Teil permanent veränderlichen Messgrößen wurden mittels einer rechnergestützten, digitalen Datenerfassung und -verarbeitung verwaltet und analysiert. Dazu wurde mit Hilfe der Software HPVEE ein geeigneter Auswertalgorithmus programmiert, welcher die Steuerung, Beobachtung und Protokollierung des Gesamtprozesses erlaubt.

4.2 Nachweismessplatz

Zur Charakterisierung der gepolten Proben wurde ein geeigneter Nachweismessplatz konzipiert und aufgebaut. Der schematische Aufbau dieses Messplatzes ist in Abbildung 4.3 zu sehen. Dieser Messplatz erlaubt eine Erzeugung und Detektion der zweiten Harmonischen in den gepolten Proben. Ein generiertes SHG – Signal lässt auf eine in der Probe vorhandene Suszeptibilität

zweiter Ordnung schließen, was als Beleg für eine erfolgreiche Polung angesehen werden kann.

Als Fundamentalquelle für die Erzeugung der SHG wurde ein gütegeschalteter Surelite II Nd-YAG-Laser der Firma CONTINUUM eingesetzt. Dieser emittiert bei der Wellenlänge von 1064 nm und liefert eine maximale Pulsspitzenleistung von ca. 20 MW bei einer Energie von 300 mJ , Pulsdauern von 13 ns und einer Taktfrequenz von 10 Hz .

Die direkte Bestrahlung der Proben mit einem Freistrahls mit solch hohen Pulsspitzenleistungen führt neben unkontrollierten Lichtverhältnissen an der Probe oftmals auch zu ihrer Zerstörung. Deshalb wurde zur Lichtübertragung eine passive Quarzglasfaser eingesetzt. Der Einsatz einer solchen Übertragungsfaser bringt für die Lichtführung von der Strahlquelle bis zur Probe einige Vorteile. Einerseits kann durch die Faser die Fundamentalstrahlung recht einfach von der Strahlquelle zur davon mechanisch entkoppelten Nachweisteknik geführt werden. Des Weiteren sind dadurch definierte Verhältnisse am Faserausgang und damit an der Probe gegeben. Konkret sind die durchsetzte Probenfläche, die Strahltaile am Faserausgang (ω_0), der Austrittswinkel (θ) und die Rayleighlänge (z_R) genau bekannt.

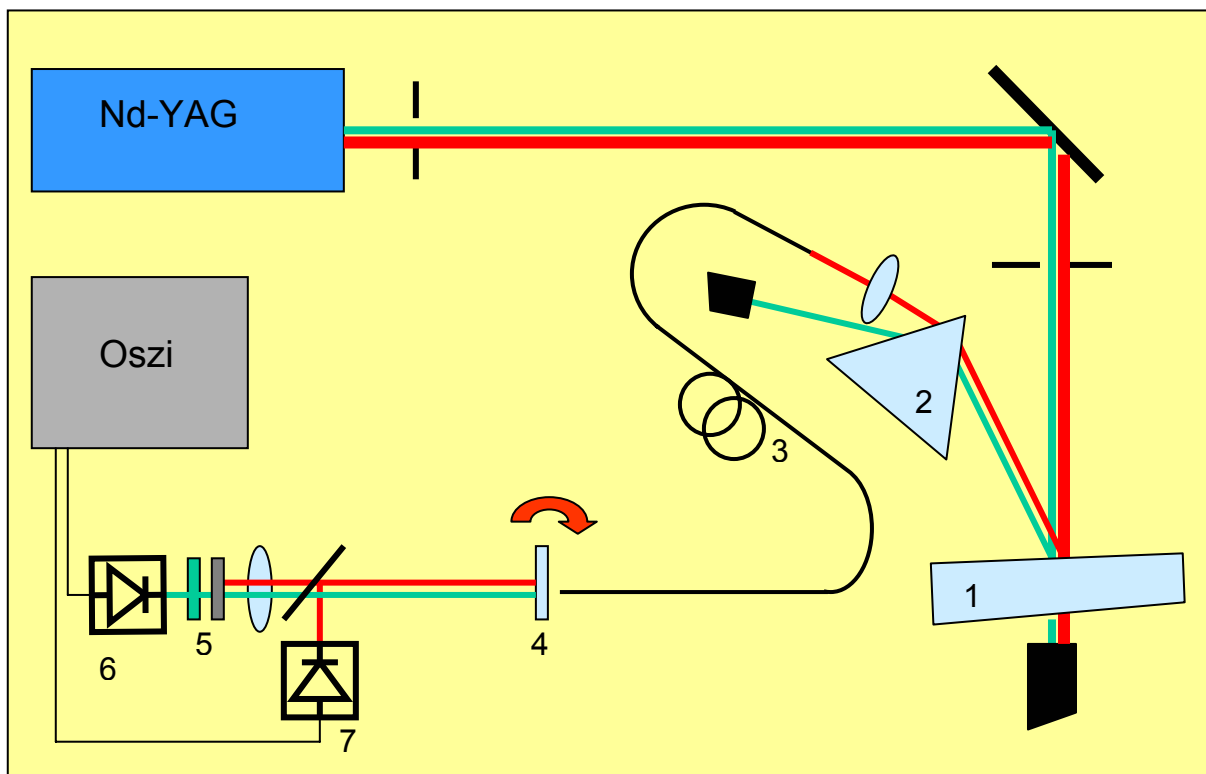


Abbildung 4.3 Schematischer Aufbau des Nachweismessplatzes für die Erzeugung und Detektion der zweiten Harmonischen.

Der Faserkern ist mit Germanium dotiert und besitzt einen Durchmesser von $30\ \mu\text{m}$. Für die Wellenlänge von $1064\ \text{nm}$ ergibt sich hierfür ein Modenfelddurchmesser von $20\ \mu\text{m}$. Der Außendurchmesser der Faser beträgt $230\ \mu\text{m}$. Als Coating wurde ein herkömmliches Acrylat mit niedrigem Brechungsindex verwendet. Der zugehörige Divergenzwinkel am Faserausgang beträgt 2° .

Die zur Leistungsregulierung in den Strahlengang eingebaute Glasplatte (1) sorgt unter Nutzung der Fresnelreflexion für eine Abschwächung der Fundamentalwelle um ca. 95 %. Die reflektierte Fundamentalstrahlung durchläuft auf dem Weg zur Übertragungsfaser (3) noch ein Prisma (2), und wird durch dessen dispersive Wirkung versäubert. Restpumplicht, Fluoreszenzlicht oder anderes Fremdlicht im Bereich der zweiten Harmonischen werden auf diese Weise von der Fundamentalstrahlung spektral und örtlich getrennt, wodurch nur diese mittels der Übertragungsfaser, welche nun zusätzlich als $20\ \mu\text{m}$ - Blende wirkt, eingefangen und weitergeleitet wird. Ein weiterer Vorteil der Übertragungsfaser besteht im Schutz der hergestellten Proben vor Zerstörung durch zu hohe Intensitäten. Im Falle zu hoher Eingangsintensitäten erfolgt automatisch eine Endflächenzerstörung der Übertragungsfaser, welche leicht ausgetauscht werden kann. Die Probe bleibt unversehrt.

Eine z-Verschiebung der Fasereinkoppelseite durch den Fokus hindurch ermöglicht sowohl eine Abstimmung der durch die Faser übertragenen Leistung, als auch das Austesten der Zerstörschwelle der Faser. Abbildung 4.4 zeigt die eingekoppelte Leistung in Abhängigkeit der Verschiebung der Fasereinkoppelseite entlang des Fokus.

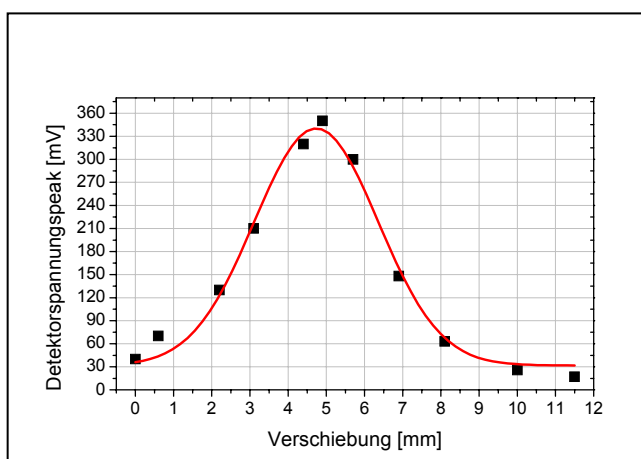


Abbildung 4.4
*In die Übertragungsfaser
 eingekoppelte Leistung in
 Abhängigkeit von der Fokuslage
 in z-Richtung.*

Zunächst sollen gepolte nichtphasenangepasste planare Proben (4) untersucht werden. Die daraus resultierende geringe Effizienz der SHG erfordert eine empfindliche Detektion des generierten Signals. Gleichzeitig muss die nahezu ungeschwächte Fundamentalwelle vollständig vom Detektor ferngehalten werden.

Diese Forderung wurde mittels einer speziell optimierten Filterkombination (5) erfüllt, welche die SHG - Welle um den Faktor 0,5, die Fundamentalwelle jedoch um 10 Größenordnungen abschwächt. Diese Filterkombination bestand aus Schott-Filtergläsern der Typen *BG18*, *BG38* und *KG5* verschiedener Dicken und Transmissionswerte. Als Detektor wählten wir eine Si-Photodiode mit integriertem Hybridverstärker (6). Ihre Empfindlichkeit liegt bei $3,4 \text{ V}/\mu\text{W}$, ihre Messbereichsdynamik beträgt $1,3 \cdot 10^4$ und ihre Bandbreite beträgt 5 kHz . Da, bedingt durch die gegebene Bandbreite, die Zeitauflösung des Detektors nicht ausreicht um die Leistung eines einzelnen 13 ns - Pulses direkt zu messen, wurde hier die Pulsspitzenleistung aus der Pulsenergie berechnet. Zusätzlich zur ersten Photodiode verwendeten wir eine zweite Si-Photodiode (7) gleichen Typs zur Signaltriggerung. Die Nachweisgrenze für SHG - Signale mit dieser Detektor-Filter-Einheit liegt bei 530 pW .

5 Strukturierung von Elektroden

In Kapitel 2 wurde von der Möglichkeit berichtet, die Konversionseffizienz für die Erzeugung der zweiten Harmonischen durch eine Quasiphasenanpassung zu steigern. Zur Realisierung solch einer QPM sind periodisch strukturierte Elektroden erforderlich, um die Proben periodisch zu polen. Deshalb werden in diesem Kapitel drei unterschiedliche Herstellungsverfahren untersucht, mit denen entsprechende Elektroden erhalten werden. Anschließend werden die erzeugten Elektroden auf ihre Eignung hin getestet [STRa07].

Wie bereits in Kapitel 3 beschrieben wurde, sind für den Polungsprozess hohe Spannungen und damit einhergehend hohe elektrische Feldstärken notwendig. Dadurch ergeben sich für die Proben und für die Elektroden besondere Anforderungen. Die Elektroden müssen fest auf der Probenoberfläche haften, eine Temperaturbeständigkeit bis zu $300\text{ }^{\circ}\text{C}$, und eine Hochspannungsfestigkeit bis zu 8 kV aufweisen. Auch sollten anspruchsvolle Proben, wie z.B. Quarzglasfasern mit D-förmiger Oberseite und runder Unterseite, mit Elektroden versehen werden können. Ein weiteres, ganz wichtiges Kriterium ist die Sauberkeit der Probenoberfläche zur Vermeidung von Ladungsbewegungen, besonders auch in die Zwischenräume der strukturierten Elektroden.

Für die zur Quasiphasenanpassung notwendige periodische Polung der Proben ergibt sich eine weitere Anforderung an die Elektroden. Es werden gitterförmig strukturierte Elektroden (Kammelektroden) benötigt, welche exakt bemessene Periodenlängen der Größenordnung von $40\text{ }\mu\text{m}$ aufweisen müssen.

5.1 Mikrostrukturierung durch Laserablation

Ein Vorteil der Laserablation gegenüber herkömmlichen Maskenätzverfahren liegt in der gleichzeitigen optischen Beobachtung des Schreibprozesses mittels Mikroskop oder Kamera, wodurch eine simultane Ergebniskontrolle möglich ist. Dadurch kann jederzeit in den Bearbeitungsprozess eingegriffen und auch nach dem Prozessbeginn noch eine Änderung der ursprünglich geplanten Strukturen vorgenommen werden.

Für die hier durchgeführten Experimente wurde zur Strukturierung ein ArF-Laser der Firma TUI-LASER eingesetzt, welcher bei einer Wellenlänge von 193 nm emittiert. Seine maximale Pulsenergie beträgt 13 mJ , und seine mittlere Leistung beträgt $6,5\text{ W}$ bei einer Pulsdauer von 20 ns . Der Strahlquerschnitt bemisst sich auf $(3 \times 6)\text{ mm}$ und durchläuft eine variable Blende, die durch ein Linsensystem abgebildet wird. Damit lassen sich Strukturgrößen bis zu $\geq 5\text{ }\mu\text{m}$ realisieren. Die Probe befindet sich auf einem x-y-Positioniertisch, wobei die Bewegung in beide Richtungen unabhängig voneinander angesteuert werden kann. Dadurch lassen sich auf der Probenoberfläche beliebige zweidimensionale Elektrodenstrukturen erzeugen.

Nachdem zunächst die Substratoberfläche mit einer 150 nm dicken Chrom-Schicht versehen wurde, erfolgte die Bestrahlung mit dem eben beschriebenen ArF-Laser. Durch die kurze Pulsdauer erfährt die Chromschicht einen kurzzeitigen Energieeintrag und es kommt zum definierten Materialabtrag.

Abbildung 5.1 zeigt strukturierte Chromelektroden, welche durch dieses Verfahren sowohl auf planaren Substraten, als auch auf der Oberfläche einer D-förmigen Quarzglasfaser hergestellt worden sind.

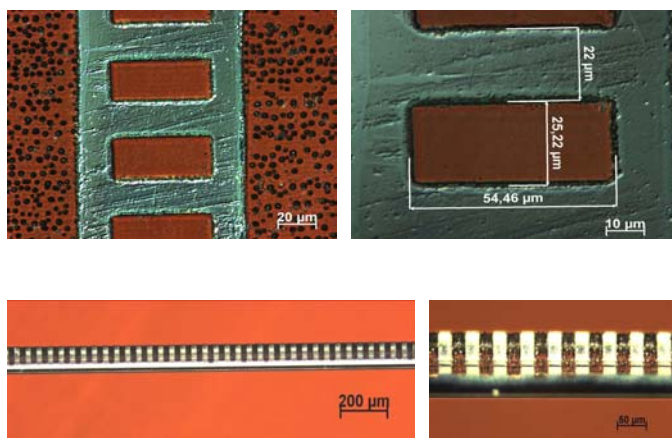


Abbildung 5.1
Mittels Laserablation
hergestellte strukturierte
Chromelektroden
a) auf einem planaren
Quarzsubstrat
b) auf der Oberfläche einer
D-förmigen Quarzglasfaser.

Es ist deutlich zu erkennen, dass durch dieses Verfahren die gewünschten Strukturgrößen und Strukturformen hergestellt werden können. Als problematisch erweist sich allerdings ein leitfähiger feiner Niederschlag, welcher sich aus dem zuvor ablatierten Elektrodenmaterial bildet. Durch diesen feinen Niederschlag wird die gesamte Substratoberfläche, also auch die zuvor freigelegten Bereiche, wieder bedeckt. Die daraus resultierende niedrige elektrische Isolationsfestigkeit zwischen den Elektroden bewirkt bereits bei angelegten Spannungen von wenigen 100 Volt einen Stromfluss zwischen den Elektroden. Somit erweisen sich die durch Laserablation hergestellten Elektrodenstrukturen für den Einsatz beim thermischen Polen, wobei Spannungen im kV -Bereich angelegt werden, als ungeeignet.

5.2 Strukturierung durch lokale Laserreduktion

Ein weiteres Verfahren zur Herstellung strukturierter, leitfähiger Elektroden auf Quarzglassubstraten ist die Strukturierung durch lokale Laserreduktion. Ebenso wie bei der Mikrostrukturierung durch Laserablation bietet die lokale Laserreduktion als *in-situ* Strukturierungsverfahren die Möglichkeit, sofort in den Prozessverlauf einzugreifen, ihn zu stoppen und sogar zu verändern. Weiterhin erfolgt dieses Verfahren maskenlos, es besitzt eine hohe Flexibilität, es ermöglicht eine simultane Ergebniskontrolle und es erfordert einen relativ geringen Zeitaufwand.

Das Verfahren der lokalen Laserreduktion besteht aus folgenden Prozessschritten:

- 1) Vorbereitung zur Beschichtung
- 2) Goldoxid-Beschichtung
- 3) Strukturierung durch Laserreduktion
- 4) Nass-chemische, selektive Ätzung des Goldes
- 5) Umwandlung des Goldoxides in Gold durch Laserreduktion

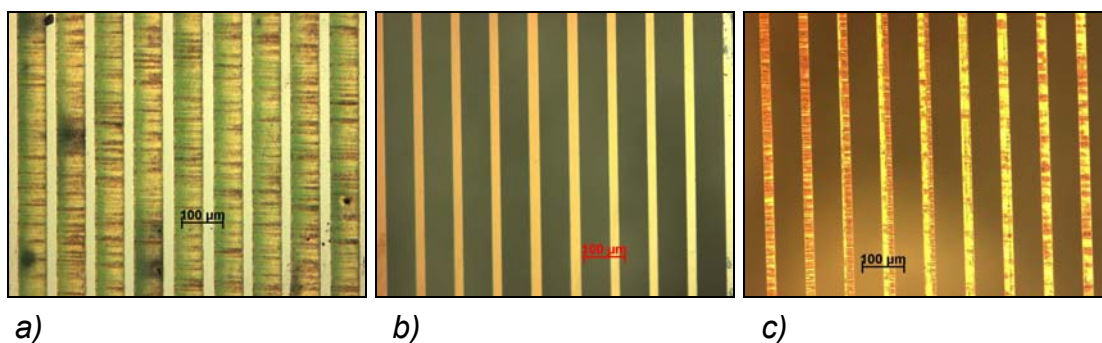


Abbildung 5.2 Strukturierungsschritte einer Goldoxidschicht zu einer Kammelektrode aus Gold.

- a) Reduktion der abzutragenden Gebiete zu Gold.
- b) Ätzung des Goldes in Kaliumjodid/Jod-Lösung.
- c) Reduktion des verbliebenen Goldoxides zur Goldelektrode.

Die Vorbereitung zur Beschichtung der Proben besteht zum einen aus einer sinnvollen und für die weiteren Prozessschritte geeigneten Halterung – dieser Schritt ist vornehmlich für das Handling von Glasfasern unverzichtbar. Zum anderen ist es unbedingt erforderlich, dass die Proben eine sehr sorgfältige Reinigungsprozedur durchlaufen, um eine ausreichende Oberflächenhaftung der hergestellten Schichten auf der Probe zu gewährleisten.

Anschließend wird die Probe mittels eines Sputterprozesses mit einer 300-500 nm dicken Goldoxid-Schicht versehen. Im Vergleich mit dem reduzierten Gold ist das verwendete Goldoxid Au_2O_3 zwar hochohmig, aber es weist dennoch in späteren Polungsversuchen keine ausreichende Isolationsfestigkeit auf. Deshalb wurde ein

neuer Lösungsansatz entwickelt. Mit Hilfe der Kenntnis über das unterschiedliche Lösungsverhalten von Gold und Goldoxid in einer Kaliumjodid/Jod-Lösung, wird hier eine indirekte Strukturierung durch lokale Laserreduktion durchgeführt. Ähnlich wie bei der Mikrostrukturierung durch Laserablation wird zuerst das abzutragende Schichtgebiet des erwünschten Strukturmusters zu Gold reduziert. Erst nach anschließender Ätzung dieses Schichtgebietes wird die verbliebene und strukturierte Au_2O_3 -Elektrode ebenfalls durch Laserreduktion zur gewünschten Gold-Elektrode umgewandelt.

Zur Reduktion des Goldoxides wurde ein Ar^+ -Ionen-Laser mit gaußförmigen Strahlprofil eingesetzt, welcher im cw-Betrieb arbeitet und bei einer Wellenlänge von 514 nm emittiert [RED02]. Durch einen Mikroskopaufbau ist es möglich damit Strukturbreiten bis zu $3\text{ }\mu\text{m}$ bei guter Kantenschärfe zu erzeugen.

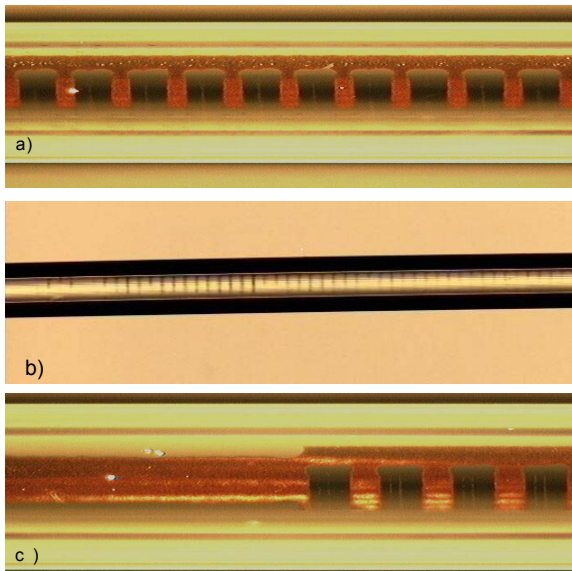


Abbildung 5.3

Oft auftretende Fehler bei der Elektrodenherstellung durch lokale Laserreduktion

- a) ungleichmäßig breite Elektrodenkämme durch lange Standzeiten des Laserstrahles.*
- b) Schwankungen in der Laserausgangsleistung.*
- c) Versatz infolge mechanischer Nachführung des Probenstückes*

Mit der Strukturierung durch lokale Laserreduktion lassen sich genau wie mit der in Abschnitt 5.1 beschriebenen Strukturierung durch Laserablation die geforderten Strukturformen und Strukturgrößen herstellen. Zusätzlich eignet sich die hier erreichte elektrische Isolationsfestigkeit zwischen den Elektroden für die beim thermischen Polen eingesetzten Spannungen im kV -Bereich.

Infolge unzureichender Technik und Prozessführung war allerdings die in den hier durchgeführten Experimenten erhaltene Ausschussquote bei der Herstellung der strukturierten Elektroden sehr hoch. In Abbildung 5.3 sind hierbei häufig auftretende Fehler dargestellt. Zum einen kommt es durch die Trägheit der verwendeten Stellmotoren beim Wechsel der Bewegungsrichtung zu erhöhtem Wärmeeintrag, was zu Schwankungen in der Elektrodenkammbreite führt. Zum anderen führen Schwankungen in der Laserausgangsleistung zu nur teilweise ausgeprägten

Elektrodenstrukturen. Weiterhin führen lange Stellwege und mechanische Toleranzen der Stellmotoren oftmals zum Versatz einzelner Strukturelemente. Aufgrund der hohen Ausschussquote bei der somit durchgeführten Herstellung der Strukturen erwies sich dieses Verfahren nur als bedingt anwendbar.

5.3 Strukturierung durch optische Lithographie

Ein Standard-Verfahren zur Herstellung von Oberflächenstrukturen ist die optische Lithographie [SHE98, VOL00, LEV01, SCH83]. Durch dieses Herstellungsverfahren können Strukturgrößen im sub- μm -Bereich problemlos angefertigt werden. Der lithographische Herstellungsprozess von mikrooptischen Bauelementen ist in Abbildung 5.4 dargestellt und gliedert sich in folgende Prozessschritte:

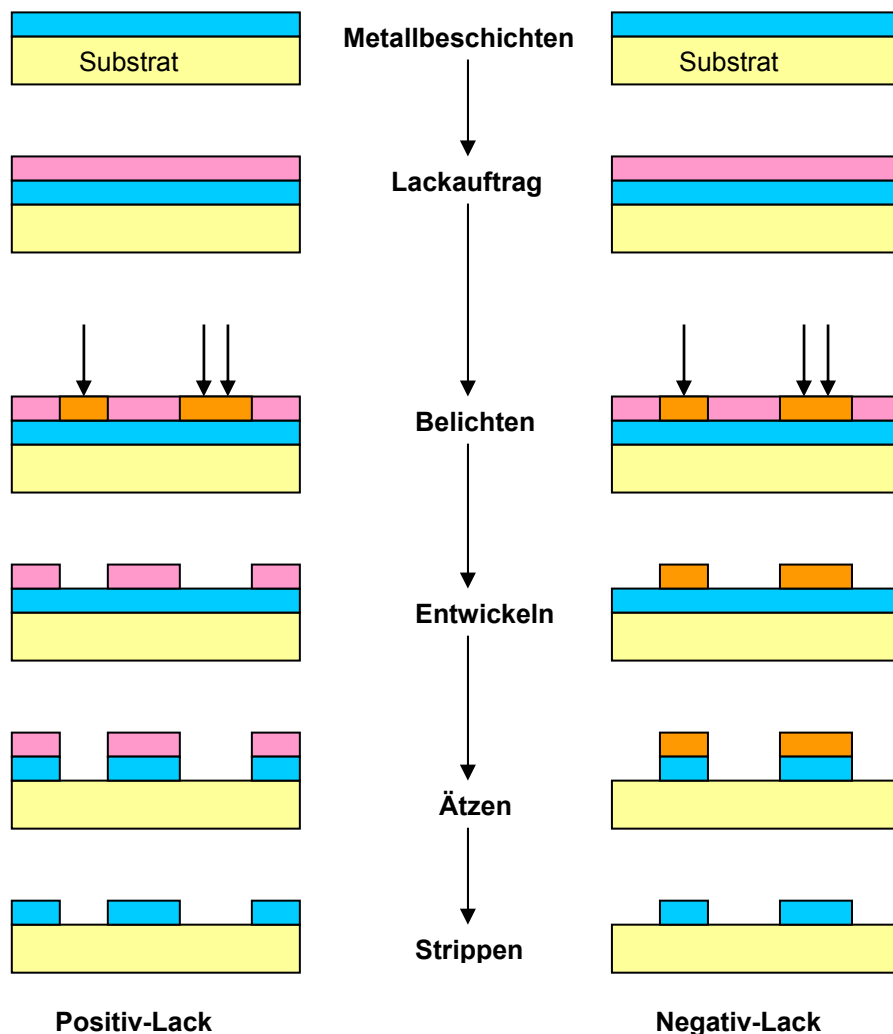


Abbildung 5.4 Ablauf der Mikrostrukturierung durch optische Lithographie.

- 1) Vorbehandlung des Substrates
- 2) Metallbeschichten
- 3) Lackauftrag
- 4) Trocknung
- 5) Belichtung
- 6) Entwicklung
- 7) Ätzprozess
- 8) Lackentfernen (Strippen).

Unter Nutzung des am IPHT vorhandenen Reinraumes wurde dieses Verfahren zur Herstellung von strukturierten Elektroden auf planaren Quarzglasproben und auf der Oberfläche D-förmiger Quarzglasfasern angewendet.

Als Elektrodenmaterial wurden die Proben in ersten Versuchen mit einer 80 nm dicken Nickel-Chrom-Schicht bzw. in späteren Versuchen mit einer 50 nm dicken Goldschicht versehen. Nach dem anschließenden Belacken und Trocknen der Proben erfolgte die Belichtung. Bei der Belichtung wird in den Lack eine bestimmte Energiemenge eingebracht, wodurch dieser eine chemische Veränderung erfährt. Hierzu wurde ein Laserbelichter eingesetzt, welcher als Lichtquelle einen He-Cd-Laser besitzt. Dieser He-Cd-Laser emittiert bei einer Wellenlänge von 442 nm und wird mit einer Ausgangsleistung von 75 mW betrieben. Mit Hilfe dieses Laserbelichters können Strukturen bzw. Gitterperioden bis in den $1\text{ }\mu\text{m}$ -Bereich hergestellt werden. Nach der anschließenden Entwicklung des Lackes erfolgt das Ätzen, wobei das lithographisch erzeugte Maskenmuster in die darunter liegende Goldschicht übertragen wird. Im letzten Arbeitsschritt wird der verbliebene Lack von der Probe entfernt.

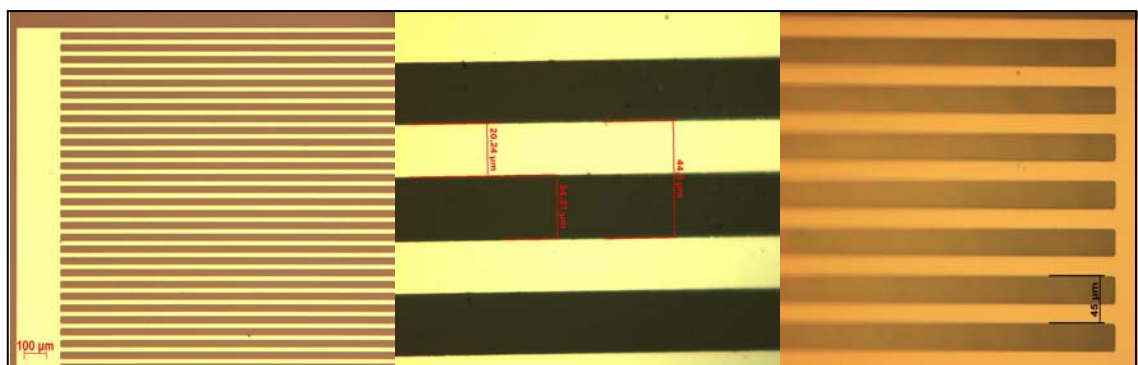


Abbildung 5.5 *Lithographisch hergestellte Nickel-Chrom-Elektroden mit $45\text{ }\mu\text{m}$ Periodenlänge und 80 nm Dicke.*

Testuntersuchungen mit den eben beschriebenen, lithographisch hergestellten Gitterelektroden haben gezeigt, dass diese Elektroden sehr gut für die Polungsanforderungen geeignet sind (Abbildung 5.5). Sowohl die Haftung der einzelnen Stege auf der Probe, als auch die Isolationsfestigkeit der freigelegten Bereiche haben sich ebenso wie die Reproduzierbarkeit als ausreichend gut erwiesen, so dass dieses Verfahren für die Strukturierung der Proben eingesetzt wird.

5.4 Vergleich der unterschiedlichen Strukturierungsverfahren

In diesem Kapitel wurden drei verschiedene Verfahren zur Beschichtung und Strukturierung von Quarzglassubstraten vorgestellt. Die nach dem jeweiligen Verfahren hergestellten Elektrodenstrukturen wurden anschließend auf ihre Eignung für den Einsatz beim thermischen Polen getestet. In Tabelle 5.1 sind dazu die wichtigsten Vergleichsgrößen zusammengestellt.

Mit jedem dieser Verfahren lassen sich die gewünschten geometrischen Strukturen sowohl in ihrer Form, als auch in ihrer Größe herstellen. Die durch den Polungsprozess gestellten Anforderungen bezüglich Hochspannungsfestigkeit, Temperaturbeständigkeit und Vakuumtauglichkeit werden ebenfalls von den durch alle drei Herstellungsverfahren gefertigten Elektroden erfüllt.

Herstellungsverfahren	gewünschte Strukturgrößen	Isolationsfestigkeit	Reproduzierbarkeit
Laserablation	+	-	+
Laserreduktion	+	+	-
Lithographie	+	+	+

Tabelle 5.1 Vergleich der unterschiedlichen Herstellungsverfahren zur Strukturierung der Elektroden.

+ geeignet.

- nicht geeignet.

Das zuerst vorgestellte Verfahren, die Mikrostrukturierung durch Laserablation, liefert allerdings nicht die erforderliche Isolationsfestigkeit. Durch Ablagerung verdampfter Rückstände auf der Substratoberfläche kommt es auch in den Zwischenräumen der strukturierten Elektroden zum Fließen von Strömen, wodurch der Polungsprozess stark eingeschränkt wird.

Bei der Strukturierung durch lokale Laserreduktion tritt diese Problematik nicht auf. Allerdings bringt dieses Verfahren bei der Herstellung der strukturierten Elektroden eine relativ hohe Ausschussquote mit sich. Diese Ausschussquote kommt durch erhöhten Wärmeeintrag durch die Trägheit der verwendeten Stellmotoren beim Wechsel der Bewegungsrichtung, durch nur teilweise ausgeprägte Elektrodenstrukturen wegen bereits sehr geringen Schwankungen der Laserausgangsleistung und durch den Versatz einzelner Strukturelemente infolge mechanischer Toleranzen der Stellmotoren zustande.

Das zuletzt vorgestellte Verfahren der Elektrodenstrukturierung durch optische Lithographie liefert bezüglich aller relevanten Anforderungen, wie Oberflächenhaftung, Strukturgrößen, Isolationsfestigkeit oder Reproduzierbarkeit zufrieden stellende Ergebnisse. Daher wird dieses Strukturierungsverfahren zur Herstellung der für die nachfolgend beschriebenen Polungsuntersuchungen benötigten Elektroden eingesetzt.

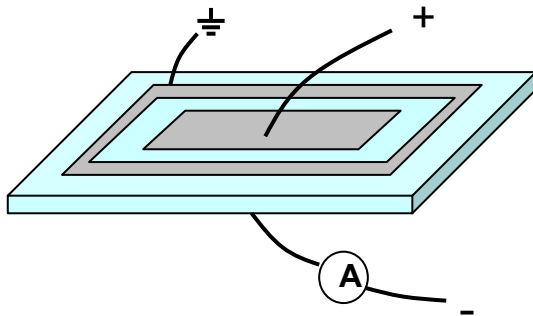
6 Polung und optische Untersuchungen an planaren Quarzglasproben

Dieses Kapitel befasst sich mit den experimentellen Untersuchungen an planaren Quarzglasproben. Dazu gehören sowohl die Polungsversuche an sich, also das Einbringen eines permanenten elektrischen Feldes in das Quarzglas, als auch die Versuche zum optischen Nachweis einer generierten zweiten Harmonischen mittels gepolter Proben. Weiterhin soll der Einfluss der Materialparameter, genauer die Anzahl der im Quarzglas enthaltenen Kationen, auf die Polbarkeit der Proben untersucht werden. Außerdem wird der Einfluss verschiedener Polungsparameter auf das SHG-Signal verifiziert und die Tiefe der *depletion-layer* durch unterschiedliche Experimente bestimmt. Des Weiteren kann das SHG-Signal durch Verwendung einer gitterförmigen Elektrodenstruktur deutlich gesteigert werden. Die in diesem Kapitel durchgeführten Untersuchungen sollen die Grundlagen behandeln, auf deren Basis dann auch die Polung von Quarzglasfasern ermöglicht werden soll.

6.1 Grundlegende Experimente

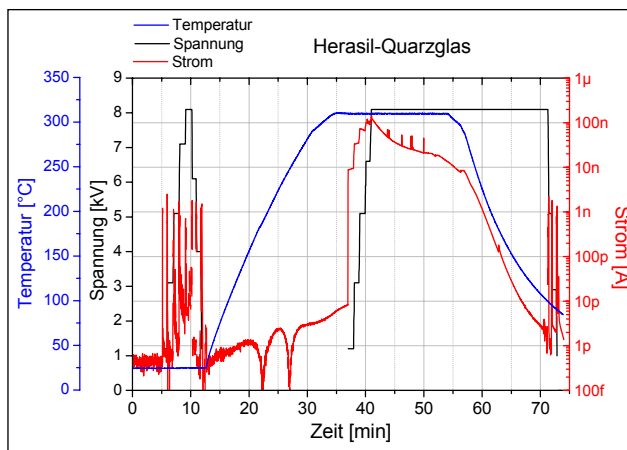
6.1.1 Fundamentale Polungsversuche

Zunächst soll das Versuchsziel darin bestehen, den Nachweis des Grundeffektes, also die Erzeugung eines effektiven $\chi^{(2)}_{eff}$ im Quarzglas, unter Verzicht auf periodische Polung und QPM zu erbringen. Hierzu wird auch aus Gründen der besseren Handhabung eine planare Quarzglasprobe mit den Abmessungen $(10 \times 10 \times 0,5) \text{ mm}$ verwendet. Sie besteht aus Herasil, genauer aus Herasil-1, einem optisch hochwertigen und blasenfreien Quarzglas der Firma HERAEUS. Genauere Daten über diesen Glastyp sind in der angegebenen Literatur aufgeführt [HER05]. Diese planare Quarzprobe wird, wie in Abbildung 6.1 dargestellt, zunächst mit einer einfachen Elektrodenanordnung versehen. Diese Anordnung beinhaltet die rechteckigen Ober- und Unterelektrode und eine ringförmige Schutzelektrode.

**Abbildung 6.1**

Planare Quarzglasprobe, versehen mit unstrukturierter Anode (+) und Schutzelektrode (Ring) auf der Oberseite, und Kathode (-, analog Anode, hier unsichtbar) auf der Unterseite.

Das Elektrodenmaterial besteht aus einer silberhaltigen, leitfähigen Paste CB028 der Firma DUPONT. Es wird, teils unter Zuhilfenahme einer Maske, auf die Probenoberfläche aufgestrichen und thermisch ausgehärtet. Nachdem nun die Elektroden fest auf der Oberfläche haften, können sie problemlos kontaktiert werden. Nun kann die Polung solch einer präparierten Probe erfolgen.

**Abbildung 6.2**

Polungsdiagramm einer planaren Quarzglasprobe, aufgetragen sind die Temperatur, die Polungsspannung und der Stromfluss über der Zeit.

Zunächst erfolgt eine gleichmäßige Aufheizung der Probe auf $\sim 300\text{ }^{\circ}\text{C}$. Der beim Aufheizvorgang gemessene Stromfluss übersteigt dabei den Wert von 10 pA nicht. Nach dem Erreichen dieser Temperatur wird die Spannung zugeschaltet. Sofort ist ein deutlicher Anstieg im Stromfluss bis in den 100 nA -Bereich zu erkennen, welcher mit einer großen Zeitkonstante im Bereich von Minuten abklingt. Dieser *Polungsstrom* kommt, wie bereits in Kapitel 3 diskutiert, durch das Fließen der nun aufgrund der hohen Temperaturen beweglichen Kationen zustande, welche als Spurenelemente auch im verwendeten Herasil-Quarzglas enthalten sind.

Als Referenzmessung zum Polungsstrom wurde vor der Aufheizphase der Stromfluss bei Raumtemperatur gemessen. Abbildung 6.3 zeigt die I - U -Kennlinie sowohl für Raumtemperatur, als auch für Polungstemperatur. Während der Polungsstrom im nA -Bereich liegt, fließen bei Raumtemperatur um

Größenordnungen geringere Ströme, welche deutlich unter 10 pA liegen. Dieses Ergebnis bestätigt die in Kapitel 3 getroffene Aussage, dass die Beweglichkeit der Kationen bei Raumtemperatur zu gering ist, um Quarzglas zu polen, d.h. eine *depletion-layer* entstehen zu lassen.

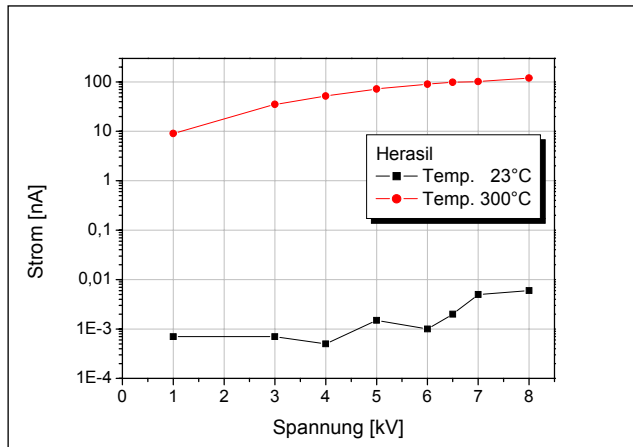


Abbildung 6.3
*I-U-Kennlinie beim
 Polungsprozess
 für eine Herasil-Probe
 bei Raumtemperatur und
 bei Polungstemperatur.*

Nachdem der Polungsstrom deutlich abgeklungen ist, wird die Heizung abgeschaltet, und die im Vakuum befindliche Probe bei weiterhin anliegender Hochspannung mit Hilfe einer Gasströmungskühlung auf Raumtemperatur abgekühlt. Erst am Ende dieses Vorganges wird die Hochspannung abgeschaltet. Das Quarzglas ist nun gepolt, d.h. die in Kapitel 3 beschriebene Ladungsverteilung und die damit einhergehende *depletion-layer* sind im Quarzglas entstanden und dauerhaft eingepreßt. Nach dem Entfernen der Elektroden kann die gepolte Quarzprobe nun in einer SHG-Messung weiter untersucht werden.

6.1.2 Nachweis des SHG-Signals

Zum Nachweis des SHG-Signals wird die gepolte Probe mit Hilfe des in Kapitel 4.2 dargestellten Nachweismessplatzes untersucht. Sie wird flächig unter verschiedenen Einfallswinkeln durchstrahlt, und das generierte SHG-Signal wird detektiert. Aus Abbildung 6.4 ist zu erkennen, dass die verwendete Fundamentalwellenlänge $\lambda_P = 1064,3\text{ nm}$ und die verwendete Pulsdauer $t_P \sim 13\text{ ns}$ betragen.

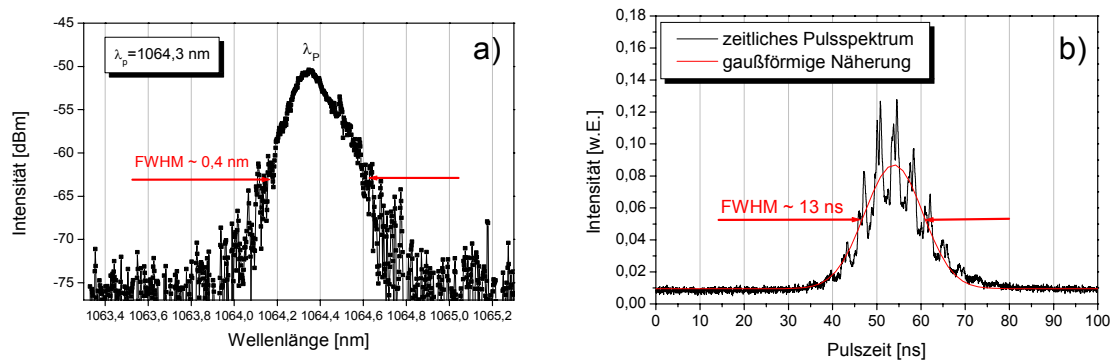


Abbildung 6.4 a) Spektrum und b) Pulsdauer der verwendeten Nd-YAG Fundamentalquelle.

Abbildung 6.5 zeigt das mittels gepolter Probe erhaltene SHG-Signal unter verschiedenen Einfallswinkeln θ . Wie bereits aus den Simulationsrechnungen in Kapitel 3.4 hervorgeht, ändert sich das SHG-Signal mit wachsendem Einfallswinkel, weil sich dadurch die Wechselwirkung zwischen der Fundamentalwelle und den entsprechend wirksamen Tensorkomponenten des zuvor im Quarzglas generierten $\chi^{(2)}_{eff}$ -Tensors ändert. Bei einem Einfallswinkel von $\theta = 0^\circ$ findet zwischen der Fundamentalwelle und dem $\chi^{(2)}_{eff}$ -Tensor keine Wechselwirkung statt. Bei Vergrößerung von θ wirkt der $\chi^{(2)}_{eff}$ -Tensor immer stärker und es ist ein mit θ proportional wachsendes SHG-Signal zu beobachten. Diese Abhängigkeit des SHG-Signals vom Einfallswinkel θ bestätigt das in Abbildung 3.13 dargestellte Simulationsergebnis.

Das Abknicken des in Abbildung 6.5 dargestellten SHG-Signals bei Einfallswinkeln ab 55° ist durch die dann stark anwachsenden Fresnelverluste bedingt.

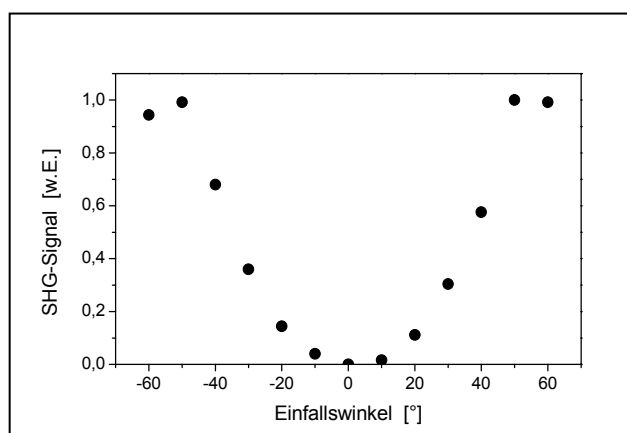


Abbildung 6.5

Abhängigkeit des SHG-Signals einer gepolten Herasil-Quarzprobe vom Einfallswinkel, Probendicke = $500 \mu\text{m}$, Polungsspannung = 4 kV , Polungstemperatur = 280°C , Polungsdauer $\sim 20 \text{ min}$.

Zur Frequenzüberprüfung der SHG wurde in die Fundamentalquelle ein handelsüblicher und zum Laser zugehöriger Verdopplerkristall eingebaut, und damit die zweite Harmonische erzeugt. Zusätzlich wurde der Detektor mit einem Interferenzfilter versehen und das SHG-Signal detektiert. Durch dieses Interferenzfilter wird sichergestellt, dass tatsächlich nur die zweite Harmonische vom Detektor erfasst werden kann. Nachdem der Verdopplerkristall wieder ausgebaut wurde, ist stattdessen die gepolte Quarzglasprobe als Frequenzkonverter eingesetzt worden. Beim Messsignal, welches dann am mit unverändertem Interferenzfilter versehenen Detektor erhalten wird, handelt es sich um eine im gepolten Quarzglas erzeugte zweite Harmonische.

In Abbildung 6.6 ist die mittels der gepolten Quarzglasprobe erzeugte Leistung der zweiten Harmonischen über der Leistung der Fundamentalwelle aufgetragen. Hierin ist die für SHG-Prozesse typische quadratische Abhängigkeit des erzeugten SHG-Signals zu erkennen.

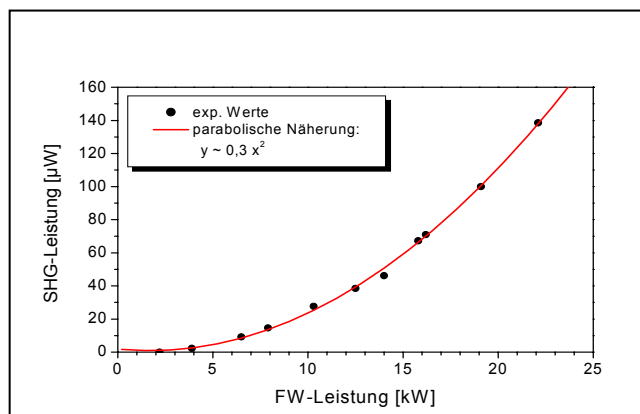


Abbildung 6.6

Quadratische Abhängigkeit des generierten SHG-Signals einer gepolten Herasil-Probe von der Leistung der Fundamentalwelle.

Zunächst lag das Augenmerk dieser Experimente auf dem grundsätzlichen Nachweis einer zweiten Harmonischen. Die dabei erhaltenen geringen Konversionseffizienzen in der Größenordnung von 10^{-9} sind auf die keineswegs optimierten Parameter zur effizienten SHG-Erzeugung zurückzuführen. So ist in dieser Versuchsanordnung aufgrund der hier vorhandenen, und in Abschnitt 6.4 genauer erläuterten, geringen Tiefenausdehnung der *depletion-layer*, beispielsweise keine Phasenanpassung möglich.

Die Polungsversuche wurden mit weiteren Herasil-Proben wiederholt, und bei all diesen Versuchen konnte das zuvor erhaltene Ergebnis, also die Erzeugung der zweiten Harmonischen, bestätigt werden. Ungepolte Herasil-Quarzglasproben, welche ebenfalls auf SHG untersucht wurden, zeigten kein Signal. Diese Versuche haben damit gezeigt, dass es mit der in Kapitel 4 vorgestellten Polungsapparatur möglich ist, Quarzglas grundsätzlich zu polen.

6.1.3 Materialeigenschaften

Nachdem ein SHG-Signal und damit eine erfolgreiche Polung an Herasil-Proben nachgewiesen worden ist, sollte nun der Einfluss von Materialparametern auf die Polbarkeit untersucht werden. Dazu wurden Polungsversuche an verschiedenen Materialtypen (Tabelle 6.1) vorgenommen und diese bezüglich der Erzeugung von SHG-Signalen bewertet.

SHG-Signal	NEIN	JA	NEIN
Kationen-dotierung	$\leq 0,02$ ppm	1-10 ppm	≥ 1000 ppm
Quarzglas-material	Suprasil (Heraeus) Lithosil Q1 (Schott)	Herasil (Heraeus) Infrasil (Heraeus) HSQ 100 (Heraeus) PN 235 (Qsil) PF 1 (IPHT/Heraeus)	Vycor (Corning) Coverslips (Qsil)

Tabelle 6.1 SHG-Signal unterschiedlicher Quarzglasmaterialien in Abhängigkeit ihrer Kationendotierung.

Ein SHG-Signal konnte an verschiedenen Quarzglasmaterialien reproduziert werden, welche alle aus *fused silica* – hergestellt aus reinem, natürlichem, geschmolzenen Quarzsand – bestehen. Dazu gehören neben Herasil die Materialien Infrasil und HSQ 100 (beide Heraeus), PN 235 (Qsil) und PF1 (IPHT/Heraeus). Die Kationenkonzentration, welche für die Ausbildung der *depletion-layer* von entscheidender Wichtigkeit ist, liegt in all diesen Gläsern im Bereich zwischen *einem* bis *zehn* ppm. Zwei weitere Gruppen anderer Quarzglasmaterialien wurden ebenfalls untersucht, zeigten aber kein SHG-Signal. Zur ersten Gruppe gehören die Glastypen Vycor (Corning) und Coverslips (Qsil). Die Kationenkonzentration dieser Gruppe (z.B. Na^+ im %-Bereich) ist deutlich zu hoch, wodurch bereits eine geringe räumliche Verschiebung der einzelnen Ladungsträger genügt, um ein ausreichendes Gegenfeld an die beim Polungsprozess an die Probe angelegte Hochspannung aufzubauen. Dies führt zu einer nur sehr geringen Tiefenausdehnung der *depletion-layer*. Die zweite Gruppe besteht aus synthetisch hergestelltem Quarzglas und ihr gehören Suprasil (Heraeus) und Lithosil Q1 (Schott) an. Diese synthetischen Quarzgläser sind praktisch frei von Spurenelementen, wodurch die Ausbildung einer *depletion-layer* nicht möglich ist. Die Kationenkonzentration dieser Gläser liegt nach Angabe der Hersteller deutlich unterhalb von *0,02 ppm*. Ein zu sauberes Quarzglas ist für die

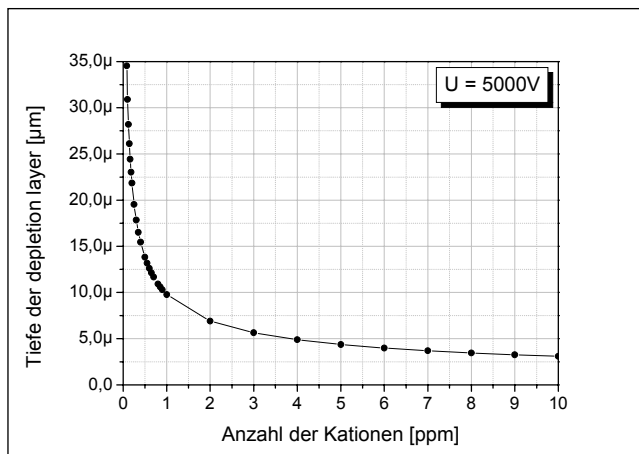
Erzeugung einer effektiven Nichtlinearität zweiter Ordnung $\chi^{(2)}_{eff}$ ebenso wenig geeignet wie ein Quarzglas mit einer zu hohen Anzahl an Spurenelementen. Somit erweisen sich nur Quarzglasmaterialien mit einem definierten Reinheitsgrad – mit Kationenkonzentrationen im niedrigen *ppm*-Bereich – als polbar. In Tabelle 6.2 ist die Tiefenausdehnung der *depletion-layer* in Abhängigkeit der im Quarzglas vorhandenen Kationen zu sehen.

Anzahl der Kationen [ppm]	Tiefe der <i>depletion-layer</i> [μm]
0,01	98
0,03	56
0,07	37
0,1	31
0,5	14
1	9,8
2	6,9
3	5,6
5	4,4
8	3,5
10	3,1
20	2,2
50	1,4
100	1
150	0,8
500	0,4
1000	0,3
5000	0,1
10000	0,01

Tabelle 6.2 Berechnete Tiefenausdehnung der *depletion-layer* in Abhängigkeit der im Quarzglas vorhandenen Anzahl der Kationen.

Zur Berechnung wurde die bereits in Kapitel 3.3 hergeleitete Gleichung (3.11) herangezogen, wobei für die angelegte Spannung wieder $U_0 = 5 \text{ kV}$ und für ε wieder der Wert $3,8 \cdot \varepsilon_0$ eingesetzt wurde.

Mit Hilfe der in Tabelle 6.2 dargestellten Zahlenwerte ist in Abbildung 6.7 der eben berechnete Zusammenhang zur Veranschaulichung noch einmal graphisch dargestellt. Mit Blick auf die in den Experimenten verwendeten Gläser wurde für die Kationenkonzentration ein Bereich bis zehn *ppm* dargestellt.

**Abbildung 6.7**

graphische Darstellung der Tiefenausdehnung der depletion-layer in Abhängigkeit der im Quarzglas vorhandenen Kationen.

Wie bereits aus Tabelle 6.1 hervorgeht, hat die Kationenkonzentration im Quarzmaterial entscheidenden Einfluss auf das SHG-Signal und damit auch auf die Tiefenausdehnung der *depletion-layer*. Genau dieses Resultat wird durch die Simulationsergebnisse in Abbildung 6.7 unterstützt. Den Herstellerangaben zu Folge liegt die Kationenkonzentration der Quarzgläser, welche ein SHG-Signal zeigen (Tabelle 6.1), im Bereich weniger *ppm*. Laut Abbildung 6.7 müsste dafür die Tiefenausdehnung der *depletion-layer* zwischen *vier bis zehn µm* betragen, was in Abschnitt 6.4 auch experimentell überprüft werden soll. Auch die deutlich geringere Tiefenausdehnung der *depletion-layer*, und das dadurch fehlende SHG-Signal bei hohen Kationenkonzentrationen, was in Tabelle 6.1 erhalten wurde, wird durch die Simulationsrechnungen bestätigt.

Theoretisch steigt die Tiefenausdehnung der *depletion-layer* für eine geringere Anzahl von im Quarzglas vorhandenen Kationen immer mehr an. Im Gegensatz dazu zeigen die hier verwendeten synthetisch hergestellten Quarzgläser mit einer laut Herstellerangaben geringen Kationenkonzentration von weniger als *0,02 ppm* kein SHG-Signal. Diese Gläser sind praktisch frei von Spurenelementen.

6.2 Einfluss der Polungsparameter auf das SHG-Signal

Nachdem die Erzeugung der zweiten Harmonischen in gepoltem Quarzglas erfolgreich nachgewiesen werden konnte, soll nun der Einfluss verschiedener Polungsparameter auf das SHG-Signal untersucht werden.

6.2.1 Einfluss der Polungstemperatur

Wie bereits in Kapitel 3.2 bei der Beschreibung des Polungsprozesses geschildert wurde, muss die Probe für eine erfolgreiche Polung auf eine notwendige Mindesttemperatur gebracht werden. Durch diese Energiezufuhr erlangen die vorhandenen Kationen eine Beweglichkeit und sind nicht mehr starr im Glasnetzwerk verankert. Zur Klärung des Einflusses der Polungstemperatur werden daher Polungsversuche bei verschiedenen Temperaturen durchgeführt, und anschließend werden die Proben auf ihr SHG-Signal untersucht. Das Ergebnis ist am Beispiel von Herasil-Quarzglas in Abbildung 6.8 dargestellt. Bei niedrigen Temperaturen unterhalb von 220 °C ist kein SHG-Signal zu erkennen. Die dabei in das Material eingebrachte Energiezufuhr ist noch zu gering, um die Kationen aus ihrer Verankerung in der Quarzglasmatrix zu lösen. Eine weitere Erhöhung der Polungstemperatur führt zum deutlichen Sichtbarwerden eines SHG-Signals, wobei bei Temperaturen um 300 °C keine deutliche Steigerung des SHG-Signals mehr eintritt. Durch Temperaturen ab ~ 270 °C wird bei diesem Quarzmaterial genügend Energie eingebracht, um das Loslösen der Kationen von der Quarzglasmatrix und damit eine ausreichende Kationenbeweglichkeit zu gewährleisten. Bei den anderen polbaren Quarzglasmaterialien liegt die Temperaturschwelle ebenfalls knapp unter 300 °C.

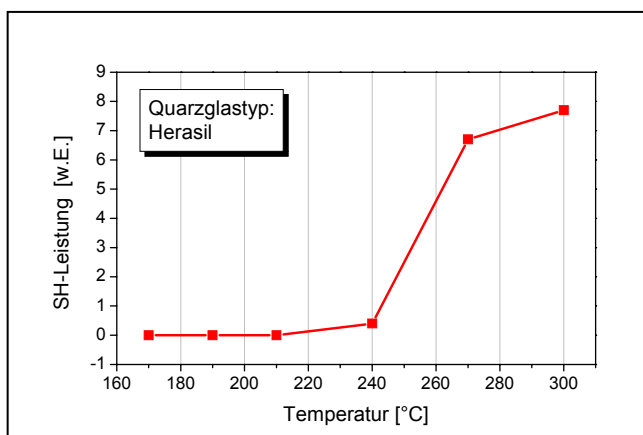


Abbildung 6.8
Abhängigkeit des SHG-Signals einer gepolten Herasil-Probe von der Polungstemperatur.

6.2.2 Einfluss der Polungsspannung

Wie oben beschrieben, bewirkt die Energiezufuhr durch Temperaturerhöhung eine Beweglichkeit der vorhandenen Kationen, wodurch diese nicht mehr starr im Glasnetzwerk verankert sind. Durch das Anlegen einer Hochspannung an solch eine aufgeheizte Quarzglasprobe bewegen sich die Kationen nun zielgerichtet zur Kathode hin. In den folgenden Versuchen wurden an die Proben Hochspannungen bis maximal 8 kV angelegt.

Das Anlegen solch hoher Spannungen sollte für die Ausbildung einer *depletion-layer* ausreichend sein, zumal die elektrische Durchschlagfeldstärke für die verwendeten Quarzproben, z.B. Herasil, zwischen $4 - 40 \text{ kV/mm}$ liegen [HER05]. Bedenkt man, dass die angelegte Hochspannung über der *depletion-layer* abfällt, welche eine Tiefenausdehnung von nur wenigen μm besitzt, so ist die elektrische Durchschlagfeldstärke im Quarzmaterial schnell erreicht und sogar überschritten. Dielektrische Durchbrüche während des Polungsvorganges bewirken ein plötzliches, extrem ansteigendes Signal im Stromfluss und sind an einigen Proben, besonders in Proben mit einer Kationenkonzentration im %-Bereich, beobachtet worden.

Abbildung 6.9 stellt die Abhängigkeit des SHG-Signals von der angelegten Hochspannung dar. Eine Erhöhung der Spannung bewirkt ein deutliches Ansteigen des SHG-Signals.

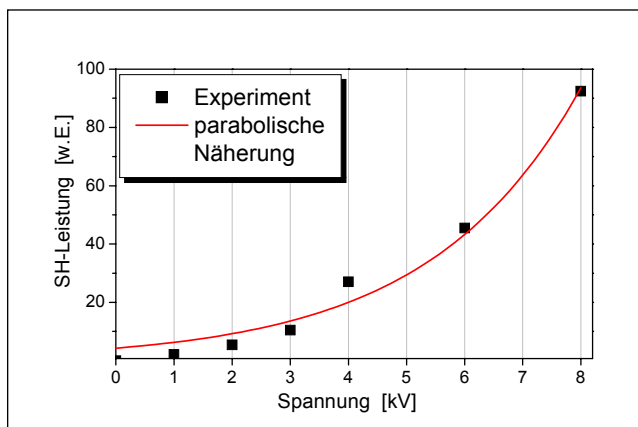


Abbildung 6.9

Abhängigkeit des SHG-Signals einer gepolten Herasil-Probe von der Polungsspannung.

6.3 Stabilität der generierten Nichtlinearität zweiter Ordnung

6.3.1 Alterungserscheinungen

Das durch Polung im Quarzglas erzeugte $\chi^{(2)}_{\text{eff}}$ soll nun auf seine Stabilität untersucht werden. Zunächst wurde eine gepolte Herasil-Quarzglasprobe über einen Zeitraum von drei Jahren regelmäßig mittels einer SHG-Messung untersucht. Während dieser Messungen sind über den gesamten Zeitraum keine Degradationserscheinungen des SHG-Signals beobachtet worden. Das erhaltene SHG-Signal ist stabil und in seiner Leistung konstant. Die Probe wurde über die gesamte Zeitdauer hinweg unter normalen Laborbedingungen aufbewahrt, d.h. keiner direkten Sonnenbestrahlung ausgesetzt und bei Raumtemperatur gelagert. Die experimentell ermittelte, und über mehrere Jahre beobachtete Stabilität des

durch Polung im Quarzglas erzeugten $\chi_{eff}^{(2)}$ bestätigt die bereits in Kapitel 3.1 erwähnten Ergebnisse von Modellrechnungen, welche besagen, dass die erzeugte Nichtlinearität zweiter Ordnung sogar über viele hundert Jahre hinweg stabil ist [MAG05, CAL98].

6.3.2 Einfluss der Umgebungstemperatur

Bereits in der Arbeit von Myers et al. wurde vom Löschen der zuvor im Quarzglas erzeugten Nichtlinearität zweiter Ordnung durch das Erhitzen der Probe auf $\sim 250^\circ\text{C}$ berichtet [MYE91]. Dieses Ergebnis konnte durch eigene Experimente bestätigt werden. Durch das Erhitzen einer zuvor gepolten Quarzglasprobe auf $\sim 270^\circ\text{C}$ ist das SHG-Signal vollständig verschwunden und die zuvor erzeugte Nichtlinearität zweiter Ordnung wieder gelöscht worden. Abbildung 6.10 zeigt die Abhängigkeit des SHG-Signals nach dem systematischen Aufheizen einer zuvor gepolten Herasil-Probe.

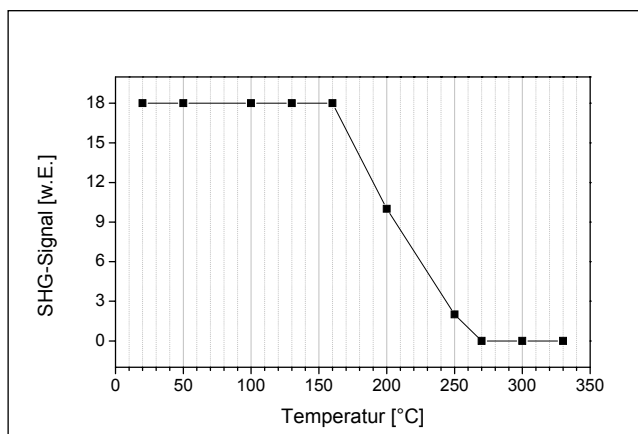


Abbildung 6.10

SHG-Signal einer gepolten Herasil-Probe unter dem Einfluss verschiedener Temperaturen. Ausheizzeit ~ 20 min.

Beim Erhitzen der Probe bis zu 150°C sind keine Degradationserscheinungen im SHG-Signal zu erkennen. Das Anlegen höherer Temperaturen beeinflusst allerdings das SHG-Signal immer deutlicher, und ab Temperaturen von $\sim 270^\circ\text{C}$ verschwindet es vollständig. Die vorher durch den Polungsprozess im Quarzglas entstandene *depletion-layer* wird durch die bei den jetzt anliegenden Temperaturen beweglichen Kationen bevölkert. Dadurch verschwindet das bis dahin existierende *eingefrorene* elektrische Feld E_0 , und damit auch die vorhandene effektive Nichtlinearität zweiter Ordnung.

Wird solch eine, durch Tempern behandelte Quarzglasprobe erneut gepolt, so kann dadurch die vorher gelöschte effektive Nichtlinearität zweiter Ordnung wieder reproduziert werden. Die von solch einer erneut gepolten Quarzglasprobe

erhaltenen SHG-Signale unterscheiden sich weder in ihrer Stabilität noch in ihrer Leistung von den SHG-Signalen einer erstmalig gepolten Probe.

6.3.3 Einfluss von UV-Bestrahlung

In der Literatur wurde mehrfach von dem Einfluss ultravioletter Strahlung auf gepoltes Quarzglas berichtet [KAM01, CHA03]. Durch den durch diese Strahlung in das gepolte Quarzglas eingebrachten Energieeintrag kann, ähnlich wie beim bereits beschriebenen Aufheizen der gepolten Proben, die zuvor generierte Nichtlinearität zweiter Ordnung vollständig ausgelöscht werden. Gemäß den oben genannten Arbeiten werden durch die UV-Bestrahlung im Quarzglas Defektzentren, wie in Abbildung 3.3 dargestellt, induziert. Die dabei freiwerdenden Kationen neutralisieren die durch den Polungsprozess entstandene *depletion-layer*. In eigenen Experimenten wurde eine gepolte Quarzglasprobe mit einem gepulsten ArF-Laser der Firma TUI LASER AG bestrahlt. Der ArF-Laser emittiert bei einer Wellenlänge von 193 nm mit einer maximalen Wiederholrate von 1000 Hz , und einer maximalen Pulsenergie von 13 mJ pro Puls. Die Pulsdauer beträgt 20 ns und der Strahlquerschnitt $(3 \times 6)\text{ mm}^2$. Nach der Ermittlung günstiger Prozessparameter werden die Experimente ausschließlich mit einer Wiederholrate von 10 Hz und einer Energie von $2,8\text{ mJ}$ pro Puls durchgeführt. Bereits bei einer Fluenz von 15 mJ/cm^2 kann die effektive Nichtlinearität zweiter Ordnung vollständig gelöscht werden. In Abbildung 6.11 ist das SHG-Signal in Abhängigkeit der Pulsanzahl dargestellt. Es ist deutlich zu erkennen, dass sich das SHG-Signal mit steigender Pulsanzahl verringert.

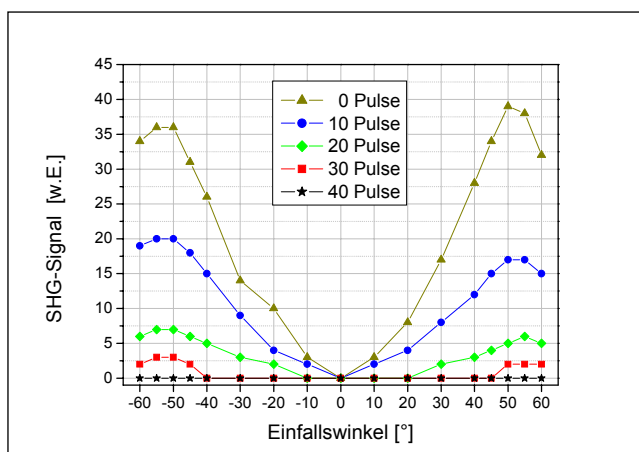


Abbildung 6.11
SHG-Signal einer gepolten Herasil-Probe unter verschiedenen Einfallswinkeln (Maker-fringe-Struktur) nach Bestrahlung mit unterschiedlicher Pulsanzahl (Fluenz: 15 mJ/cm^2).

Die entsprechende Zeitabhängigkeit ist explizit in Abbildung 6.12 dargestellt. Verwendet wird hierin der jeweilige Maximalwert des SHG-Signals, welcher bei Einfallswinkeln zwischen 50° bis 60° (bzw. -50° bis -60°) liegt. Die Probe wurde zum

Teil mit einer Aluminium-Maske abgedeckt, so dass nur einzelne Abschnitte der direkten UV-Bestrahlung ausgesetzt sind.

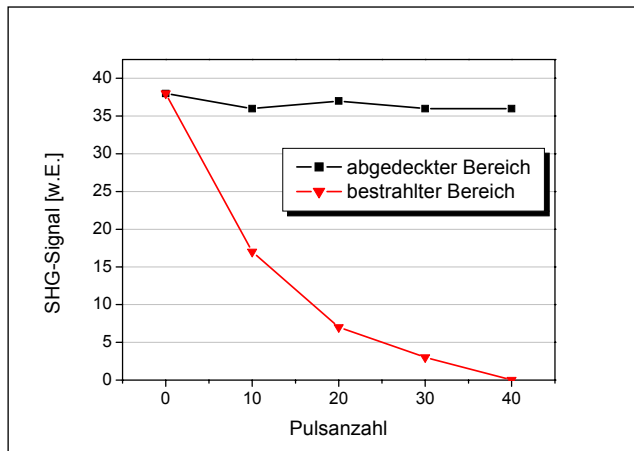


Abbildung 6.12

Abhängigkeit des SHG-Signals von der Bestrahlungsdauer der Herasil-Probe für den abgedeckten Bereich (Quadrat) und den nicht abgedeckten Bereich (Dreieck).

SHG-Messungen in den durch die Aluminium-Maske abgedeckten Bereichen zeigen ein konstantes SHG-Signal, während das SHG-Signal in den direkt bestrahlten Bereichen rasch abfällt. Das schnelle Abklingverhalten des SHG-Signals bei den hier verwendeten kurzen Bestrahlungszeiten im Sekundenbereich ist neben der verwendeten Fluenz von 15 mJ/cm^2 auch auf die deutlich ausgeprägte Absorptionskante des verwendeten Quarzglas vom Typ *Herasil* um 190 nm zurückzuführen, welche die hier zur Bestrahlung eingesetzte Wellenlänge von 193 nm gut absorbiert (Abbildung 6.13).

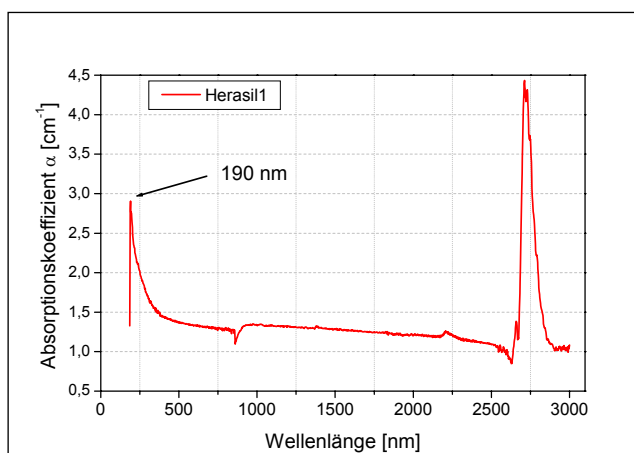


Abbildung 6.13

UV-VIS-NIR-Absorptionsspektrum der verwendeten Herasil-Quarzglasprobe.

Tatsächlich kann also durch die UV-Bestrahlung einer gepolten Quarzglasprobe die zuvor generierte Nichtlinearität zweiter Ordnung vollständig gelöscht werden. Unter Zuhilfenahme einer entsprechenden Maske ist mit dieser Methode sogar eine periodische Löschung des zuvor generierten $\chi_{\text{eff}}^{(2)}$ möglich, wodurch eine Quasiphasenanpassung im gepolten Quarzglas realisiert werden kann [CHE03]. Genauere Untersuchungen haben allerdings gezeigt, dass bei höheren

Pulsenergien neben dem Verschwinden des SHG-Signals in den bestrahlten Bereichen auch eine deutliche Abschwächung des SHG-Signals in den abgedeckten Bereichen zu erkennen ist. Die Ursache hierfür können sowohl Beugungserscheinungen der UV-Strahlung an den Kanten der verwendeten Maske, als auch Rückreflexionen von der Probenunterseite her sein. Durch diesen Umstand wird die an sich elegante Methode des nachträglichen, periodischen UV-Löschens einer zuvor durch Polung in das Quarzglas eingebrachten Nichtlinearität zweiter Ordnung zur Realisierung einer Quasiphasenanpassung erheblich beeinträchtigt.

6.4 Experimentelle Bestimmung der Tiefenausdehnung der *depletion-layer*

Da das in einer gepolten Quarzglasprobe generierte $\chi^{(2)}_{eff}$ nur innerhalb der *depletion-layer* existiert, ist die genaue Kenntnis der Tiefenausdehnung dieser Schicht von besonderer Wichtigkeit. So lassen sich daraus einerseits Aussagen über den quantitativen Wert des generierten $\chi^{(2)}_{eff}$ gewinnen. Andererseits ist es gerade im Hinblick auf komplexere Bauelemente, wie gepolte Quarzglasfasern und Wellenleiter, von essentieller Bedeutung, dass sich der lichtführende Kern innerhalb dieser Schicht befindet, d.h. dass die Ausdehnung der *depletion-layer* den Faserkern auch vollständig erreicht und umschließt. Daraus lassen sich wiederum Erkenntnisse über die erforderliche Lage des lichtführenden Kernes innerhalb der Quarzglasfaser gewinnen, bzw. Rückschlüsse über ihre notwendige Form und Beschaffenheit ziehen.

In diesem Abschnitt soll die Tiefenausdehnung der *depletion-layer* experimentell ermittelt werden. Dazu werden zwei verschiedene Charakterisierungsmethoden verwendet. Bei der einen Charakterisierungsmethode kommt eine modifizierte Maker-fringe Messung zum Einsatz, und bei der anderen werden die gepolten Proben in Flusssäure geätzt und in regelmäßigen Abständen durch eine SHG-Messung überprüft.

Bereits in Kapitel 3.3 wurde ein eindimensionales, stationäres Modell zur Bestimmung der Tiefenausdehnung der *depletion-layer* verwendet. Aus diesen Modellrechnungen geht Gleichung 3.11 hervor, mit der sich die Tiefenausdehnung l_0 abschätzen lässt

$$l_0 = \sqrt{\frac{2 \cdot \varepsilon \cdot U_0}{-\rho}}. \quad (3.11)$$

Mit den in Kapitel 3.3 angegebenen Werten und der Annahme der direkten Elektrodenkontaktierung der Probenoberfläche, ergab sich für die Tiefenausdehnung der *depletion-layer* ein theoretischer Wert von $l_0 = 5,6 \mu\text{m}$.

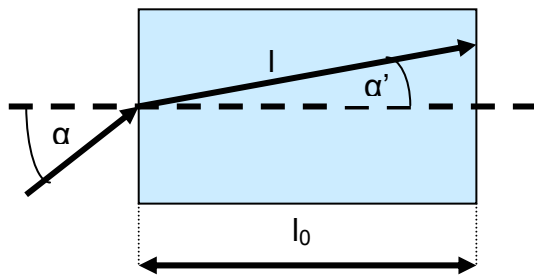
6.4.1 Modifizierte Stack-Maker-fringe Messung

Als erste experimentelle Charakterisierungsmethode soll eine modifizierte Maker-fringe Messung durchgeführt werden.

Bei einer klassischen Maker-fringe Messung wird ein $\chi^{(2)}$ -Medium mit intensiver Laserstrahlung beleuchtet, und es kommt zur Erzeugung der zweiten Harmonischen. Durch Drehung des vom intensiven Laserstrahl beleuchteten $\chi^{(2)}$ -Mediums um sehr kleine Winkel nimmt die Intensität der zweiten Harmonischen infolge der Änderung der effektiven Länge des $\chi^{(2)}$ -Mediums (Abbildung 2.5) periodisch zu und ab. Dieses Verhalten wurde erstmalig 1962 von Maker et al. experimentell nachgewiesen [MAK62]. Bedingt durch das Aussehen der über dem Drehwinkel aufgetragenen periodisch wechselnden Maxima und Minima der Intensität der zweiten Harmonischen, ist dafür die Bezeichnung Maker-fringes entstanden.

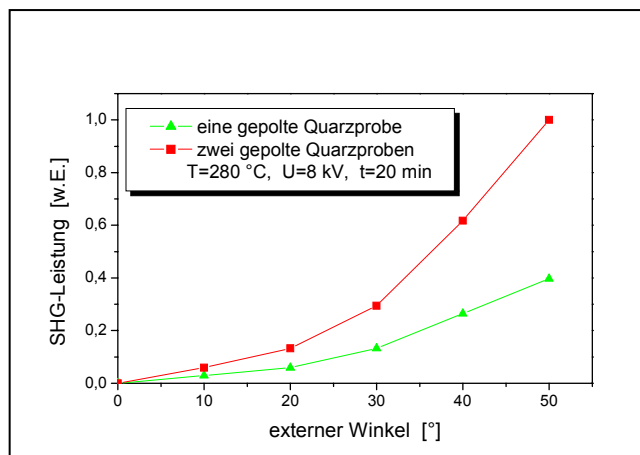
Aus dem Abstand zwischen den auftretenden Maxima oder Minima und den zugehörigen Drehwinkeln lässt sich auf die vorhandene Kohärenzlänge und daraus sogar auf die Größe der vorhandenen Nichtlinearität schließen.

Um also die Tiefenausdehnung l_0 mit der klassischen Maker-fringe Messung zu bestimmen, sollte diese mindestens eine Kohärenzlänge betragen. Die Kohärenzlänge im hier verwendeten Quarzglas (Herasil) beträgt $l_c = 24 \mu\text{m}$ bei einer Wellenlänge von 1064 nm . Wie bereits oben beschrieben, ist die berechnete Tiefenausdehnung der *depletion-layer* aber nur etwa $6 \mu\text{m}$. Selbst durch eine effektive Vergrößerung von l_0 durch Bestrahlung der Probe unter großen Einfallswinkeln, lässt sich aufgrund des durch das Snellius'sche Brechungsgesetz gegebenen Brechungswinkels, welcher bei streifender Inzidenz der Grenzwinkel und damit der maximal erreichbare Winkel ist, die erforderliche Tiefe nicht erreichen, und man befindet sich immer noch auf der aufsteigenden Flanke des ersten Maker-fringes.


Abbildung 6.14

Vergrößerung der Länge l_0 durch Vergrößerung des Einfallswinkels. Dennoch ist die vergrößerte Länge l durch den Grenzwinkel der Totalreflexion begrenzt.

Die modifizierte Maker-fringe Messung, genauer die *'stack' Maker-fringe technique* (SMFT), welche erstmals von Corbari et al. vorgestellt wurde, ermöglicht auch die Bestimmung nichtlinearer Schichttiefen, welche kleinere Ausdehnungen als die Kohärenzlänge haben [COR03]. Dabei werden zwei identisch gepolte planare Quarzglasplatten, hier bestehend aus Herasil, ($10 \times 10 \times 0,2$) mm, mit den gepolten Flächen aneinandergespresst, und wie bei der klassischen Maker-fringe Messung unter verschiedenen Einfallswinkeln mit der Fundamentalwelle bestrahlt. Anschließend wird diese Messung mit nur einer dieser beiden gepolten Quarzglasplatten wiederholt. Die jeweils dabei erhaltenen SHG-Signale sind in Abbildung 6.15 über dem Einfallswinkel aufgetragen.


Abbildung 6.15

SHG-Signal für eine und einen Stapel aus zwei aneinandergespressten, identisch gepolten Proben, aufgetragen über dem Einfallswinkel der Fundamentalwelle.

Das Entscheidende bei dieser SMFT ist, dass bei festem Einfallswinkel das Verhältnis der SHG-Leistung der beiden aneinandergespressten gepolten Proben ($P_{2l}^{2\omega}$) zur SHG-Leistung einer gepolten Probe ($P_l^{2\omega}$) vom $\chi^{(2)}$ – Wert unabhängig ist. Somit kann aus diesem Verhältnis die Tiefe der nichtlinearen Schicht bei festem Winkel (Brechungswinkel α') berechnet werden [COR03]:

$$\frac{P_{2l}^{2\omega}}{P_l^{2\omega}} = 4 \cdot \sin^2 \left(\frac{\pi}{2} \cdot \frac{l_0}{l_c} \cdot \frac{1}{\cos(\alpha')} \right) \quad (6.1)$$

$$l_0 = \left(\frac{2}{\pi} \cdot l_c \cdot \cos(\alpha') \right) \cdot \arcsin \left(\sqrt{\frac{P_{2l}^{2\omega}}{4 \cdot P_l^{2\omega}}} \right) \quad (6.2)$$

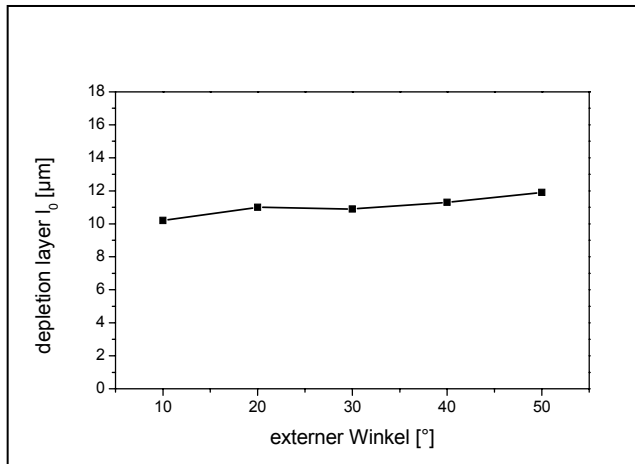


Abbildung 6.16

Tiefenausdehnung der nichtlinearen Schicht im Set aus zwei gepolten Herasil-Quarzglasplatten, aufgetragen über verschiedenen Einfallswinkeln der Fundamentalwelle.

Die hier verwendeten Quarzglasplatten wurden 20 Minuten bei einer Spannung von 8 kV und einer Temperatur von 280 °C gepolt. Abbildung 6.16 zeigt die so ermittelte Tiefenausdehnung der nichtlinearen Schicht in Abhängigkeit des Einfallswinkels. Die Tiefenausdehnung sollte vom eingestellten Einfallswinkel unabhängig sein. Ihr Mittelwert beträgt für das Set aus zwei gepolten Proben $\sim 11 \mu\text{m}$, d.h. $\sim 5,5 \mu\text{m}$ für jede der beiden Quarzglasplatten. Mit dieser Kenntnis der Tiefenausdehnung der *depletion-layer* ist es nun sogar möglich den erreichten nichtlinearen Koeffizienten abzuschätzen. Diese Abschätzung soll im Abschnitt 6.5 erfolgen.

6.4.2 Bestimmung der Tiefenausdehnung durch stufenweises Abätzen

Alternativ zur oben dargestellten modifizierten Maker-fringe Messung wird hier zur experimentellen Bestimmung der Tiefe der *depletion-layer* ein zweites Verfahren herangezogen. Hierbei werden die gepolten Proben mehrfach kurzzeitig in ein 40%-iges Flusssäurebad getaucht und nach jedem Tauchgang die abgeätzte Schichtdicke und die Leistung des vorhandenen SHG-Signals gemessen. Abbildung 6.17 a) zeigt die ermittelte Ätzrate für die hier verwendeten gepolten Herasil-Proben. Mit Hilfe der ermittelten Ätzrate kann nun zu jeder Ätzzeit ein entsprechender Abtrag zugeordnet werden. In Abbildung 6.17 b) ist das Oberflächenprofil einer für eine Dauer von 60 Minuten geätzten Probe zu sehen. Die abgeätzte Stufe beträgt $11 \mu\text{m}$.

Die Oberflächenmessung wurde mit einem Tastschnittgerät der Firma TENCOR durchgeführt, wobei das abgebildete Profil durch das Abtasten der Oberfläche mittels einer feinen Nadel erhalten wurde.

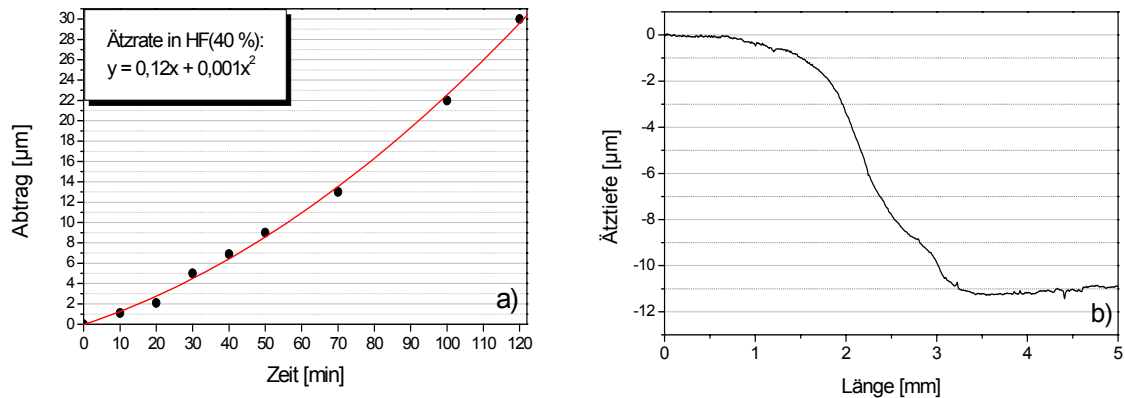


Abbildung 6.17 a) Ätzrate und b) nach einer Zeitdauer von einer Stunde abgeätzte Stufe für das hier verwendete Herasil-Quarzglas in 40%-iger Flusssäure.

Das nach jedem Ätzschritt gemessene SHG-Signal ist in Abbildung 6.18 über der Ätztiefe aufgetragen. Genau wie bei der modifizierten Maker-fringe Messung wurden die hier verwendeten Quarzglasplatten ebenfalls für 20 Minuten bei einer Spannung von 8 kV und einer Temperatur von 280 °C gepolt.

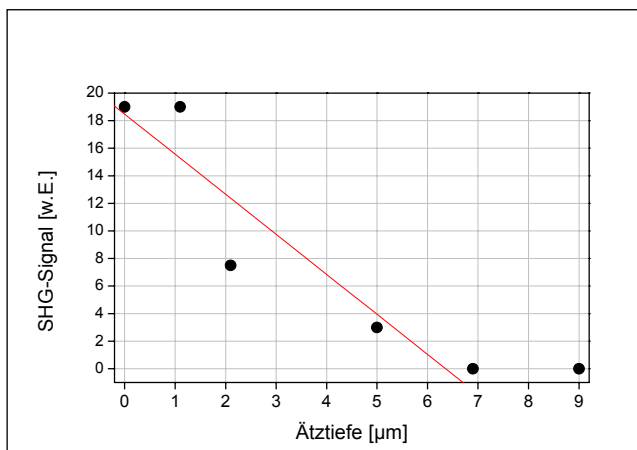


Abbildung 6.18
SHG-Signal einer bei 8 kV, 20 min und 280 °C gepolten Quarzglasprobe bei verschiedenen Äztiefen.

Es ist deutlich zu erkennen, dass das SHG-Signal mit zunehmender Ätztiefe abnimmt. Nach 30 min Ätzzeit, was einer Ätztiefe von 5 μm entspricht, ist das SHG-Signal noch schwach vorhanden, nach 40 min (7 μm) ist es verschwunden. Damit ist klar, dass die Tiefenausdehnung der *depletion-layer* für diese Probe zwischen 5 μm und 7 μm , wahrscheinlich $\sim 6 \mu\text{m}$ beträgt. Die Tiefenausdehnung,

welche mittels der modifizierten Maker-fringe Messung für unter gleichen Polungsbedingungen gefertigte Proben erhalten wurde, liegt mit $5,5 \mu\text{m}$ ebenfalls dicht am hier abgeschätzten Wert von $6 \mu\text{m}$. Somit stimmen für die Tiefenausdehnung der *depletion-layer* sowohl der in Kapitel 3.3 berechnete Wert, als auch die durch zwei unterschiedliche experimentelle Verfahren ermittelten Werte sehr gut überein. Weitere Bestätigungen für diesen Wert finden sich in der Literatur. So beträgt die von Kudlinski et al. ermittelte Tiefenausdehnung $6,2 \mu\text{m}$ (Infrasil) und die von An et al. ermittelte Tiefenausdehnung $7 \mu\text{m}$ (fused silica) [KUD03, AN04].

6.5 Abschätzung des induzierten nichtlinearen Koeffizienten

Mit der jetzt aus dem vorhergehenden Abschnitt vorhandenen Kenntnis über die Tiefenausdehnung der nichtlinearen Schicht ist es möglich, über die in Kapitel 2 hergeleiteten Gleichungen (2.25) und (2.18) den $\chi_{\text{eff}}^{(2)}$ – Wert abzuschätzen.

$$\eta_{\text{SHG}} \equiv \frac{I_{2\omega}}{I_{\omega}} = \frac{2 \cdot \omega^2}{\varepsilon_0 \cdot c^3} \cdot \frac{d^2 \cdot L^2}{n_{\omega}^2 \cdot n_{2\omega}} \cdot I_{\omega}(0) \cdot \text{sinc}^2\left(\frac{\Delta k \cdot l}{2}\right) \quad (2.25)$$

$$d \cdot l_0 = \sqrt{\frac{P_{2\omega}}{P_{\omega}^2} \cdot \frac{\varepsilon_0 \cdot c^3 \cdot n_{\omega}^2 \cdot n_{2\omega} \cdot A}{2 \cdot \omega^2}} \quad (6.3)$$

Dabei wird aus Gleichung (6.3) mit den Werten $n_{1046} = 1,44968$ und $n_{532} = 1,4608$ für die jeweiligen Brechungsindizes, der Dielektrizitätskonstante $\varepsilon_0 = 8,8 \cdot 10^{-12} \text{ As/Vm}$, der Vakuumlichtgeschwindigkeit $c = 299792 \text{ km/s}$, der Kreisfrequenz $\omega = 1,77 \cdot 10^{15} \text{ Hz}$, der durchstrahlten Querschnittsfläche $A = 3 \cdot 10^{-10} \text{ m}^2$ und den Leistungen für Fundamentalwelle und SHG-Welle $P_{\omega} = 19,5 \text{ kW}$ und $P_{2\omega} = 45 \mu\text{W}$ für $d \cdot l_0 = 6,8 \cdot 10^{-20} \text{ m}^2/\text{V}$ erhalten, woraus sich für d ein Wert von $0,012 \text{ pm/V}$ bzw. für $\chi_{\text{eff}}^{(2)}$ ein Wert von $0,025 \text{ pm/V}$ ergibt. Dieser erhaltene Wert stimmt gut mit den in der Literatur zu findenden Referenzwerten für gepolte Quarzglasproben anderer Forschungsgruppen mit $d = 0,015 \text{ pm/V}$ [KAS94] oder $d = 0,012 \text{ pm/V}$ [CHE03] überein. Nur in der Arbeit von Myers et al. sind in thermisch gepolten Quarzglas mit $\chi_{\text{eff}}^{(2)} \sim 1 \text{ pm/V}$ erheblich größere Werte berechnet worden [MYE91].

Verglichen mit herkömmlichen nichtlinear-optischen Kristallen, wie z.B. LiNbO_3 oder KTP, liegt der hier für gepoltes Quarzglas erhaltene Wert für den nichtlinearen Koeffizient d allerdings um zwei Größenordnungen unter den Werten dieser

Kristalle. Dennoch besitzen gepolte Quarzgläser – speziell gepolte Quarzglasfasern – das Potenzial, ähnliche Konversionseffizienzen wie durch die Verwendung nichtlinear-optischen Kristalle zu erreichen. Vorteile liegen hier insbesondere in der um zwei Größenordnungen höheren Zerstörschwelle, den niedrigeren optischen Verlusten, der um eine Größenordnung geringeren Dispersion und den möglichen großen Wechselwirkungslängen bei Aufrechterhaltung der Intensität. In Tabelle 6.3 sind die wichtigsten Unterschiede zwischen gepoltem Quarzglas – besonders einer gepolten Quarzglasfaser – und einem typischen nichtlinear-optischen Kristall zusammengefasst. Speziell im Hinblick auf die Effizienz bei der SHG-Erzeugung wäre eine gepolte Quarzglasfaser nach den meisten der in Tabelle 6.3 aufgeführten Gesichtspunkten geeigneter, wodurch der – verglichen mit Kristallen – niedrige nichtlineare Koeffizient durchaus kompensiert werden könnte.

	gepoltes Quarzglas/ gepolte Quarzglasfaser	nichtlinear-optischer Bulk-Kristall
nichtlinearer Koeffizient	< 1 pm/V	~ 1-10 pm/V
Dispersion	klein	groß
opt. Zerstörschwelle	hoch	niedrig
opt. Verluste	niedrig	hoch
Kosten	gering	teuer
Wechselwirkungslänge	groß	klein
Kompatibilität zu anderen faseropt. Bauelementen	gut	schlecht

Tabelle 6.3 *prinzipieller Vergleich der Eigenschaften zwischen einer gepolten Quarzglasfaser und einem typischen nichtlinear-optischen Kristall.*

6.6 Messung des Verhältnisses der Tensorkomponenten des generierten $\chi_{eff}^{(2)}$

An dieser Stelle soll der Einfluss der Polarisationsrichtung der Fundamentalwelle auf die Intensität der SHG experimentell untersucht werden. Dies trägt einerseits zur Optimierung des erhaltenen SHG-Signals bei. Andererseits lassen sich dadurch wichtige Erkenntnisse über die Struktur des zuvor durch Polung im Quarzglas generierten effektiven Suszeptibilitätstensors zweiter Ordnung gewinnen.

Anhand der aus Kapitel 3.4 erhaltenen Simulationsergebnisse steigert sich die Intensität der SHG bei der Einstrahlung mit einer linear senkrecht polarisierten Fundamentalwelle, verglichen mit einer linear parallel polarisierten Fundamentalwelle, um den Faktor 9. Mit Hilfe der Gleichungen (3.16 - 3.18) lässt sich daraus erkennen, dass sich die nichtlinearen Tensorkomponenten um den Faktor 3 unterscheiden müssen. Damit ist auch klar, dass bei senkrecht polarisierter Fundamentalwelle der nichtlineare Koeffizient d_{33} , und bei parallel polarisierter Fundamentalwelle der nichtlineare Koeffizient d_{31} zur Wirkung kommen.

Abbildung 6.19 zeigt den hier verwendeten Aufbau zur Messung der Polarisationsabhängigkeit der SHG-Intensität. Die durch eine Übertragungs-faser zugeführte Fundamentalstrahlung (Nd-YAG, $\lambda=1064\text{ nm}$) durchläuft einen Glan-Taylor Polarisator, wodurch sie sowohl eine lineare Polarisation erfährt, als auch in ihrer Polarisationsrichtung definiert eingestellt werden kann.

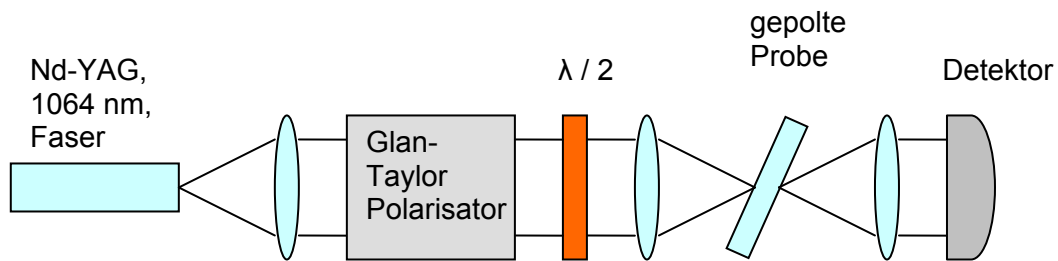


Abbildung 6.19 Versuchsaufbau zur Bestimmung des Verhältnisses der nichtlinearen Tensorkomponenten in gepoltem Quarzglas.

Mit Hilfe einer $\lambda/2$ – Platte kann nun die zuvor fest eingestellte Polarisationsrichtung beliebig gedreht und mittels eines Analysators (nicht abgebildeter zweiter Glan-Taylor Polarisator, kurzzeitig zur Analyse hinter die $\lambda/2$ – Platte eingesetzt) genau bestimmt werden. Somit ist es leicht möglich, zwischen linear senkrechter und linear paralleler Polarisationsrichtung zu wechseln. Die so polarisierte Fundamentalstrahlung wird nun auf die gepolte Probe fokussiert und das generierte SHG-Signal am Detektor gemessen. Bei Einstrahlung mit der linear parallel polarisierten Fundamentalwelle wird ein SHG-Signal von $4\text{ }\mu\text{W}$ erhalten. Dieses Signal steigt nach der Drehung der Polarisationsrichtung und damit bei Einstrahlung mit linear senkrecht polarisierter Fundamentalwelle auf $35\text{ }\mu\text{W}$ an. In Gleichung (6.4) wird daraus das Verhältnis der Tensorkomponenten d_{33}/d_{31} abgeleitet.

$$\left(\frac{d_{33}}{d_{31}} \right)_{\text{exp.}} \approx \sqrt{\frac{I_{2\omega}^{ss}}{I_{2\omega}^{ps}}} = \sqrt{\frac{35}{4}} = 2,9 \quad (6.4)$$

Das hierbei experimentell erhaltene Verhältnis von 2,9 liegt dicht an 3, dem berechneten Wert aus Kapitel 3.4. Dadurch wird das oben beschriebene Modell der Entstehung einer effektiven Suszeptibilität zweiter Ordnung aus einem *eingefrorenen* elektrischen Raumladungsfeld E_0 und dem vorhandenen $\chi^{(3)}$ (3.15) unterstützt [KIE69, KAZ94, CHE03].

6.7 Steigerung des SHG-Signals durch periodisch gepolte Quarzglasproben

Die bisher erreichten geringen Konversionseffizienzen in der Größenordnung von 10^{-9} sind vor allem auf die fehlende Phasenanpassung zurückzuführen. Der Einfluss der Phasenanpassung auf die Konversionseffizienz wird durch den Faktor $\text{sinc}^2\left(\frac{\Delta k \cdot l}{2}\right)$ in Gleichung (2.25) deutlich, und ist in Kapitel 2.2 ausführlich beschrieben. Durch QPM sollte es möglich sein, die Konversionseffizienz zu steigern. Bei Quarzglas ist der in Kapitel 2.2.2.2 beschriebene und in Abbildung 2.8 c) dargestellte Fall der QPM mit Änderung von $d(z)$ von $+d_{\text{Bulk}}$ nach 0 ($+/0$) möglich, also Zu- und Abschaltung von d_{Bulk} nach jeder Kohärenzlänge. Dies bedeutet, dass die Quarzglasproben nicht homogen, sondern periodisch gepolt werden müssen.

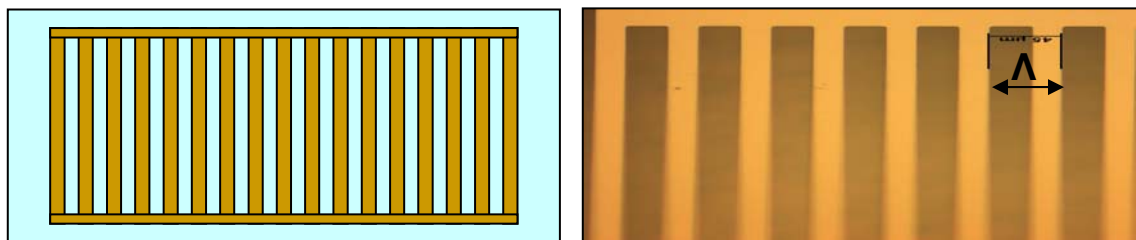


Abbildung 6.20 Schematische und realisierte Darstellung einer lithographisch hergestellten, periodisch strukturierten Nickel-Chrom-Elektrode mit $\Lambda = 44,9 \mu\text{m}$ Gitterperiode auf einer Herasil-Quarzglasprobe.

Dafür werden entsprechende Gitterelektroden benötigt. Die Herstellung solcher Gitterelektroden, welche hinsichtlich Periodizität, Hochspannungsfestigkeit, Oberflächenhaftung und Sauberkeit hohen Anforderungen genügen müssen, ist bereits in Kapitel 5 ausführlich beschrieben worden. Abbildung 6.20 zeigt solch eine lithographisch hergestellte Elektrodenstruktur. Die entsprechenden Kohärenz- bzw. Periodenlängen sind wie in Kapitel 2.2.1 erläutert nach den Gleichungen (2.37) bzw. (2.38) berechnet worden.

Für das folgende Experiment wird eine strukturierte Elektrode verwendet, deren Gittergesamtlänge 5 mm , und deren Periodenlänge $\Lambda = 44,9\text{ }\mu\text{m}$ beträgt. Diese Periodenlänge ist absichtlich etwas geringer gewählt worden als der theoretisch berechnete Wert von $48\text{ }\mu\text{m}$. Wie in Abbildung 6.21 anschaulich dargestellt ist, kann die zuvor mit der Periode Λ gepolte Quarzglasprobe um den Winkel α gedreht werden. Dadurch lässt sich die Periodenlänge Λ um einige μm durchstimmen, und es besteht nun die Möglichkeit den theoretisch berechneten Wert experimentell einzustellen, bzw. die exakte Periodenlänge für den Fall der QPM zu ermitteln.

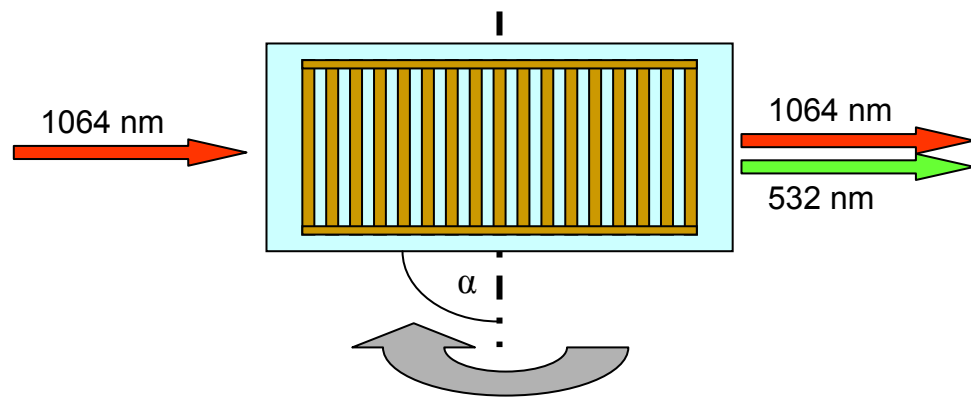


Abbildung 6.21 SHG-Erzeugung in einer periodisch gepolten Quarzglasprobe mit $44,9\text{ }\mu\text{m}$ Gitterperiode und Durchstimmbarkeit der Gitterperiode durch Drehung der Probe um den Winkel α .

In Tabelle 6.4 sind für den entsprechenden Drehwinkel α die berechneten Periodenlängen Λ_{eff} wiedergegeben.

α [°]	α_i [°]	Λ_{eff} [μm]
0	0	44,9
5	3,5	45
10	6,9	45,2
15	10,3	45,6
20	13,6	46,2
25	16,9	46,9
28	18,9	47,5
30	20,2	47,8
32	21,5	48,3
35	23,3	48,9
40	26,3	50,1
45	29,2	51,4

Tabelle 6.4 Abhängigkeit der Periodenlänge Λ_{eff} vom Einfallswinkel α . α_i ist der nach dem Snellius'schen Brechungsgesetz ermittelte, zu α gehörende Refraktionswinkel.

Der ebenfalls in Tabelle 6.4 angegebene Winkel α_i ist der dem Winkel α zugehörige, und durch das Snellius'sche Brechungsgesetz ermittelte, entsprechende Refraktionswinkel. Das bei der Drehung der Probe um den Winkel α erhaltene SHG-Signal ist in Abbildung 6.22 in Abhängigkeit des Drehwinkels dargestellt. Durchläuft die Fundamentalwelle die Probe senkrecht unter dem Winkel $\alpha = 0^\circ$, was der tatsächlichen Periodenlänge Λ entspricht, so ist kein SHG-Signal sichtbar. Ein Vergrößern von α , was der jeweiligen, ebenfalls anwachsenden Periodenlänge Λ_{eff} entspricht, führt schließlich zu einem deutlichen SHG-Signal. Bei weiterer Vergrößerung von α verschwindet das SHG-Signal wieder.

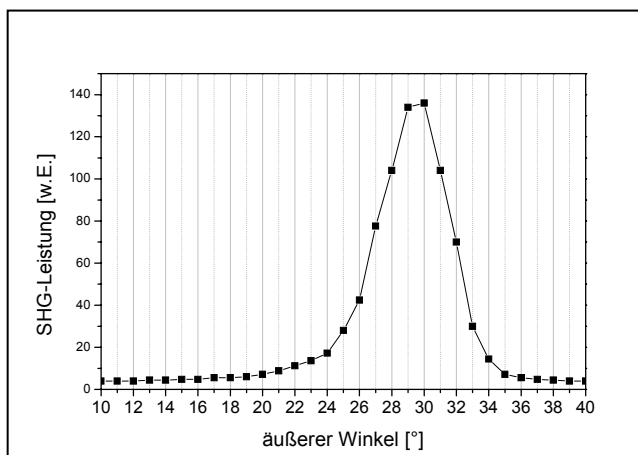


Abbildung 6.22

SHG-Signal einer mit der Periode von $\Lambda = 44,9 \mu\text{m}$ gepolten Herasil-Quarzglasprobe in Abhängigkeit des Winkels α bzw. der effektiven Periodenlänge Λ_{eff} .

Wie in Abbildung 6.22 zu erkennen ist, wird das maximale SHG-Signal bei einem Winkel von $\alpha = 30^\circ$ erhalten. Nach Tabelle 6.4 entspricht dies einer effektiven Periodenlänge von $\Lambda_{eff} = 47,8 \mu\text{m}$. Somit stimmen für die Periodenlänge das experimentell erhaltene Ergebnis von $\Lambda_{eff} = 47,8 \mu\text{m}$ und der theoretisch berechnete Wert von $\Lambda = 48 \mu\text{m}$ gut überein.

Durch die periodische Polung und die dadurch realisierte Quasi-Phasen Anpassung sollte sich auch die Konversionseffizienz und die generierte Leistung der zweiten Harmonischen steigern lassen. Die mit der hier verwendeten periodisch gepolten Quarzglasprobe erhaltene Pulsspitzenleistung der zweiten Harmonischen beträgt $2,2 \text{ mW}$. Damit konnte die erhaltene SHG-Leistung im Vergleich zu den bisher verwendeten nicht periodisch gepolten Quarzglasproben um mehr als eine Größenordnung gesteigert werden. Die zugehörige Pulsspitzenleistung der Fundamentalwelle liegt bei $19,5 \text{ kW}$, wodurch für die hier verwendete periodisch gepolte planare Quarzglasprobe eine Konversionseffizienz von 10^{-7} resultiert [STRb07]. Die somit gewonnenen Erkenntnisse zur Steigerung des SHG-Signals durch QPM und die ermittelten, dazu geeigneten Periodenlängen sollen im folgenden Kapitel bei der periodischen Polung von Quarzglasfasern eingesetzt werden.

7 Polungsuntersuchungen an Quarzglasfasern

Nachdem im vorangegangenen Kapitel die grundlegenden experimentellen Untersuchungen an gepolten *planaren* Quarzglasproben durchgeführt worden sind, so soll in diesem Kapitel die Polung von *Quarzglasfasern* erfolgen.

Bereits 1999 wurde durch eine Veröffentlichung der Forschungsgruppe um Peter Kazansky vom ORC/Southampton ein reges Interesse an der Polung von Quarzglasfasern geweckt [PRU99]. Darin wird von einer gepolten Quarzglasfaser berichtet, in welcher eine Frequenzverdoppelung von 1532 nm auf 766 nm durchgeführt wurde, wobei Konversionseffizienzen um 20 % erhalten worden sind. Aufgrund des sich daraus ergebenden Potenziales, welches in diesen gepolten Wellenleitern liegt, wurde nun weltweit von zahlreichen Gruppen an der Polung von Quarzglasfasern geforscht. Beispielsweise wären somit innerhalb der optischen Faser Schalt- und Modulationsvorgänge möglich, ohne dass das Licht dazu die Faser verlassen muss. Attraktiv wäre auch eine All-Faser-Lichtquelle, welche sich aus der Verbindung einer gepolten Faser mit einem Faserlaser zusammensetzen würde, und welche im sichtbaren Spektralbereich die in der gepolten Faser generierte zweite Harmonische emittiert. Die meisten Versuche, welche seitdem weltweit von unterschiedlichen Forschungsgruppen auf dem Gebiet der Polung von Quarzglasfasern unternommen wurden, verliefen allerdings erfolglos. Selbst die oben genannte Gruppe aus Southampton, welche weiterhin an der Polung von Quarzglasfasern arbeitete, konnte ihre Rekordwerte bezüglich der Konversionseffizienz nicht wieder erreichen. Diese bei der Polung von Quarzglasfasern erhaltenen uneinheitlichen Ergebnisse, waren ein wesentlicher Motivationspunkt für diese Arbeit.

Für eigene Faserpolungsversuche muss im ersten Schritt eine für diese Zwecke geeignete Faser hergestellt werden. Im nächsten Schritt soll dann diese Faser mit geeigneten Elektroden versehen, und anschließend gepolt werden. Im darauf folgenden letzten Schritt wird in dieser gepolten Faser eine Frequenzkonversion durchgeführt.

7.1 Herstellung geeigneter Quarzglasfasern

7.1.1 Herstellung einer Faserpreform

Wie bereits aus den Untersuchungen in Kapitel 6.1 hervorgegangen ist, so existieren tatsächlich Quarzglasmaterialien, welche eine geeignete Kationenkonzentration im niedrigen *ppm*-Bereich aufweisen und welche deshalb für Polungsuntersuchungen in Frage kommen. Für die Herstellung einer polbaren Quarzglasfaser wurde auf eines dieser in Frage kommenden Quarzglasmaterialien zurückgegriffen – auf HSQ 100.

Aus diesem HSQ 100 – Material wurde ein Quarzstab von *250 mm* Länge und *1,5 mm* Durchmesser angefertigt, welcher im späteren Lichtwellenleiter als lichtführender Kern wirksam wird. Dieser HSQ 100 – Quarzstab wurde anschließend unter Nutzung der am IPHT vorhandenen MCVD-Anlage von einem Fluor-dotierten Quarzrohr ummantelt, welches aus dem Material F320 besteht und im späteren Lichtwellenleiter als Cladding wirksam wird. Der Gesamtdurchmesser dieser Faserpreform beträgt *25 mm*. Eine Indexprofilmessung lieferte eine Brechungsindexdifferenz zwischen Kern- und Claddingmaterial von $\Delta n = 9 \cdot 10^{-4}$, wobei der Brechungsindex des niedrigbrechenden Claddingmaterials $n_{Cladd}(633\text{ nm}) = 1,4576$ beträgt.

Aus den bereits in Kapitel 3 abgeschätzten und in Kapitel 6 experimentell gewonnenen Erkenntnissen über die *depletion-layer*, welche sich in unmittelbarer Nähe der Anode befindet, und eine Tiefenausdehnung von nur wenigen Mikrometern besitzt, ist es erforderlich, die Anode möglichst dicht an den lichtführenden Kern der Faser heranzubringen. Deshalb wurde im nächsten Bearbeitungsschritt mittels Schleif- und Politurtechniken die im Querschnitt kreisförmige Faserpreform zu einer D-förmigen Preform umgewandelt (Abb. 7.1 a). Somit besteht die Möglichkeit, bei der später aus der Preform entstehenden Faser die flache Seite mit der Anode zu versehen, wodurch es direkt im darunter liegenden lichtführenden Kern durch den Polungsprozess zur Ausbildung der *depletion-layer* kommen kann.

Aus Vorversuchen, in denen bereits D-förmige Quarzglasfasern gepolt wurden, ist bekannt, dass es trotz guter räumlicher Trennung der Elektroden (Anode auf der

flachen Faserseite, Kathode gegenüber auf der runden Faserseite) und trotz ladungsfreier und sauberer Oberflächen während des Polungsprozesses zum Fließen von Strömen zwischen Anode und Kathode über die Oberfläche der Faser kommen kann. Zur Vermeidung dieser Oberflächenströme wird daher die Kathode direkt in das Quarzmaterial eingebettet. Deshalb wurde die Faserpreform mittels einer Ultraschall-Bohrtechnik parallel zum Faserkern zusätzlich mit einem Loch versehen, in welches bei der späteren Faser eine leitfähige Drahtelektrode eingebracht werden kann (Abb. 7.1 b, Abb. 7.4).

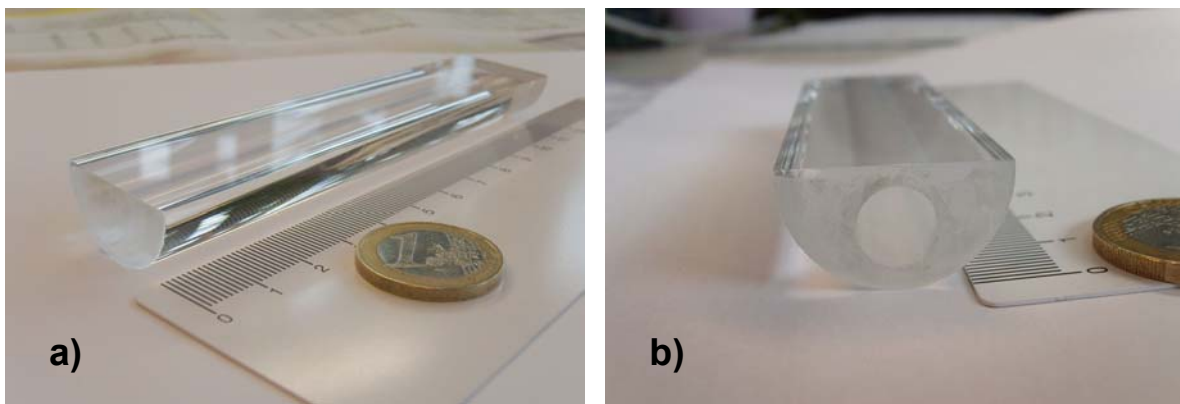
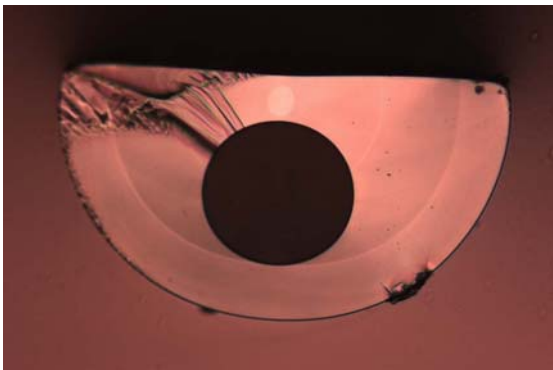


Abbildung 7.1 a) Aus den Materialien HSQ 100 und F 320 bestehende D-förmige Faserpreform.

b) Die gleiche Preform, welche zur späteren Elektrodenaufnahme mit einem Loch versehen wurde.

7.1.2 Faserziehen

Im nächsten Schritt, dem *Faserziehen*, wird die nun fertige Preform zu einer Faser verzogen. Dieser Vorgang erfolgt am Faserziehturm [STR00]. Die Preform wird im oberen Bereich des Faserziehturmes befestigt, und ihr Ende wird im Rohrofen auf ca. 2000 °C erhitzt. Das zähflüssige Glas wird jetzt zur Faser verzogen, wobei der Faserdurchmesser durch die Zuggeschwindigkeit eingestellt werden kann. Die so erhaltene Faser stellt bezüglich Form, Querschnitt und Brechungsindexprofil eine maßstabsgetreue Verkleinerung der Preform dar. Unmittelbar nach dem Faserziehen wird die Faser mit einem Coating ummantelt, welches für eine mechanisch stabile und vor Umwelteinflüssen geschützte Faser sorgt.

**Abbildung 7.2**

Querschnitt einer aus obiger Preform hergestellten Faser für Polungsversuche.

Claddingdurchmesser: 600 μm ,

Kerndurchmesser: 40 μm ,

Lochdurchmesser: 200 μm ,

Abstand D-förmige Oberfläche –

Kernmittelpunkt: 30 μm .

In Abbildung 7.2 ist der Querschnitt der aus obiger Preform verzogenen Faser 505c2 dargestellt. Die entsprechenden Abmessungen der einzelnen Faserbestandteile sind aus Tabelle 7.1 zu entnehmen. In Tabelle 7.1 sind zur Komplettierung auch Angaben zur Faser 505c1 aufgeführt, welche ebenfalls aus obiger Preform verzogen wurde. Für die in den folgenden Abschnitten beschriebenen Untersuchungen wurden jedoch ausschließlich Fasern vom Typ 505c2 verwendet.

Bezeichnung der Faser		505c1	505c2
Cladding Durchmesser	[μm]	800	600
Kern Durchmesser	[μm]	48	40
Loch Durchmesser	[μm]	260	200
Kernmittelpunkt – flache Seite	[μm]	40	30
Lochrand – Kernmittelpunkt	[μm]	34	28
Lochrand – Claddingende	[μm]	100	75
Lochmittelpunkt – flache Seite	[μm]	205	170
Claddingende – flache Seite	[μm]	435	337

Tabelle 7.1 Abmessungen zweier Fasern, welche für Polungsuntersuchungen aus der in Abschnitt 7.1.1 beschriebenen Preform hergestellt wurden.

Nachdem in diesem Abschnitt das Design und die Herstellung einer für Polungsexperimente geeigneten Faser beschrieben wurde, soll sich der folgende Abschnitt mit der Elektrodenstrukturierung und der Polung dieser Fasern befassen.

7.2 Elektrodenstrukturierung der Quarzglasfasern

7.2.1 Ätzen der Faser

Um niedrige Verluste und damit eine optische Führung der Strahlung innerhalb des Lichtwellenleiters zu gewährleisten, wurde die in Abbildung 7.2 dargestellte Faser 505c2 so konstruiert, dass der Abstand zwischen dem lichtführenden Kern und der abgeflachten Faseroberfläche noch $10\text{ }\mu\text{m}$ beträgt (Tabelle 7.1).

Da die durch den Polungsprozess im Quarzglas entstehende *depletion-layer* allerdings nur eine geringe Tiefenausdehnung von $\sim 6\text{ }\mu\text{m}$ besitzt (Kapitel 6.4), macht es sich erforderlich, im Polungsbereich den Abstand zwischen dem lichtführenden Kern und der abgeflachten Faseroberfläche zu verringern. Dazu wird die Faser im Polungsbereich auf einer Strecke von zwei bis drei Zentimeter für eine Dauer von zwei Stunden in einem Flusssäurebad geätzt, bis der Abstand zwischen Faserkern und abgeflachter Oberfläche nur noch etwa einen Mikrometer beträgt (Abb. 7.3). Somit sollte nach dem Polungsprozess die Ausdehnung der *depletion-layer* bis in den Faserkern hineinreichen, durch welchen in anschließenden optischen Untersuchungen die Fundamentalstrahlung propagiert.

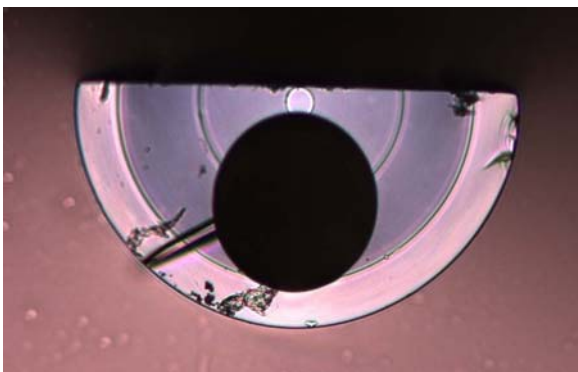


Abbildung 7.3

Querschnitt der Faser 505c2, nachdem diese für zwei Stunden in einem Flusssäurebad geätzt wurde. Dadurch konnte der Abstand zwischen abgeflachter Oberfläche und Faserkern bis auf einen Mikrometer verringert werden.

Die für die Polungsuntersuchungen notwendigen Faserdimensionen sind nun vorhanden, und die Faser kann im nächsten Schritt mit den Elektroden versehen werden.

7.2.2 Einbringen der Kathode

Die Kathode besteht aus einem Kupferdraht von $130\ \mu\text{m}$ Dicke, welcher in das dafür in der Faser vorgesehene Loch eingeführt wird (Abb. 7.4).

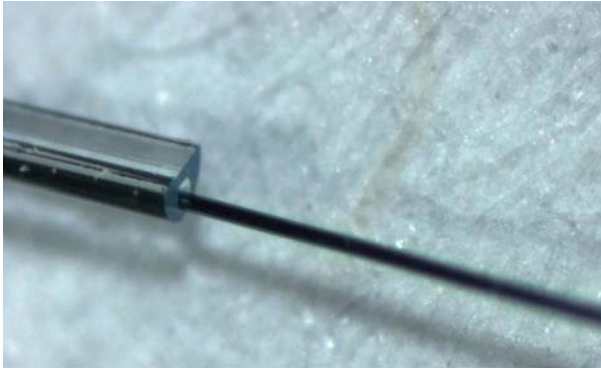


Abbildung 7.4

Faser 505c2 mit $200\ \mu\text{m}$ Lochdurchmesser zur Aufnahme des Kathodendrahtes.

Wie bereits aus den Simulationsergebnissen in Abschnitt 3.3.2 hervorgegangen ist, so kann schon ein geringer Luftspalt zwischen Elektrode und Quarzprobe gravierende Auswirkungen auf die in der Probe abfallende Spannung und damit auf die Tiefenausdehnung der *depletion-layer* haben. Deshalb sollten die Elektroden fest an der Probenoberfläche anliegen. Wird allerdings wie oben beschrieben als Elektrode ein Kupferdraht von $130\ \mu\text{m}$ Durchmesser in eine entsprechende Loch-Faser mit $200\ \mu\text{m}$ Lochdurchmesser eingeführt, so lässt sich ein Luftspalt zwischen Elektrode und Probe nicht vermeiden. Wie in Abbildung 7.5 zu erkennen ist (hier ist eine Faser mit zwei Löchern abgebildet, wobei jedes der beiden Löcher einen Draht beinhaltet), so kann dieser Luftspalt aufgrund der Windungen des Drahtes innerhalb des Loches ortsabhängig variieren.

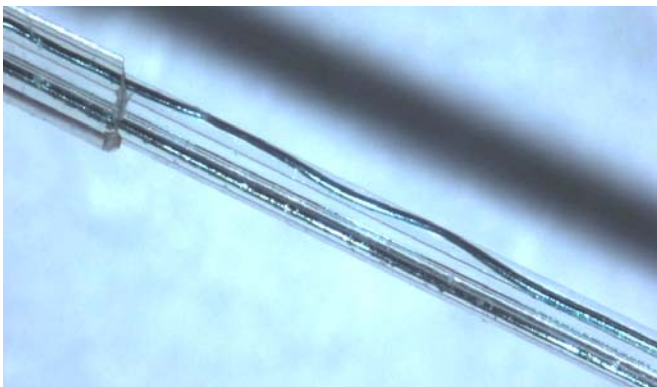
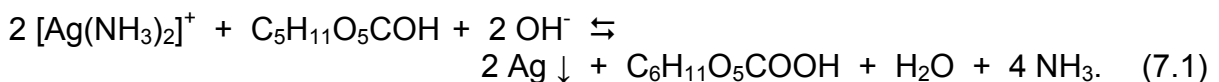


Abbildung 7.5

2-Loch-Quarzglasfaser mit jeweils inneliegenden Elektroden, welche sich winden und deshalb ungleichmäßig an der Oberfläche anliegen.

Um ein definiertes und gleichmäßiges Anliegen der Elektrode direkt am Quarzglas zu gewährleisten, und dadurch den Luftspalt völlig zu vermeiden, ist ein in diesem Zusammenhang neuartiges und erfolgversprechendes Konzept verfolgt worden. Hierzu wurde die Innenwandung des Loches, durch welches anschließend die Draht-Elektrode geführt wird, mit einer leitfähigen Silberschicht überzogen. Diese Versilberung der Löcher wurde an der Universität Paderborn durchgeführt. Dazu wurden die Fasern, deren Längen bis zu 300 mm betrugen, in eine silberdiaminkomplexhaltige Lösung getaucht, wodurch durch das Wirken der Kapillarkräfte die Löcher befüllt wurden [LOR07]. Nun kommt es zur *Tollens-Reaktion*, einem Ausfallen von elementarem Silber und zur Bildung eines Silberspiegels an den Innenwandungen der Löcher. Dieser Prozess verläuft nach folgender Reaktionsgleichung ab:



Anschließend wurden die Fasern für zwei Stunden bei 110 °C im Trockenschrank getrocknet, wobei überschüssiges Lösungsmittel, wie z.B. Wasser, verdampfen konnte. Als Ergebnis wurden D-Loch-Fasern erhalten, wobei die Innenwandung des Loches vollständig mit einer leitfähigen, dünnen Silberschicht überzogen ist (Abb. 7.6).

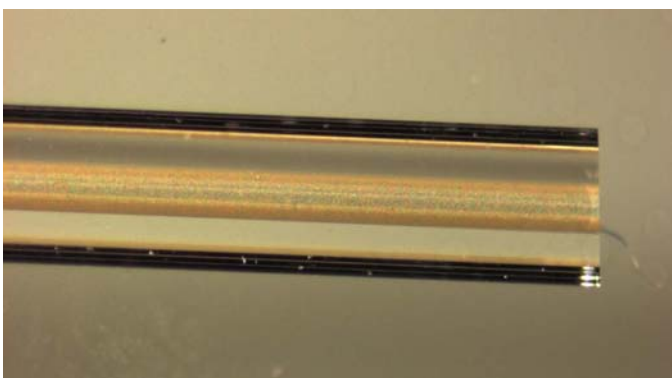


Abbildung 7.6

D-Loch-Quarzglasfaser, wobei die Innenwandung des Loches mit einer ~ 1 µm dicken, leitfähigen Silberschicht überzogen wurde.

In diese innenversilberten D-Loch-Fasern kann nun die Kathode in Form des Kupferdrahtes eingeführt werden. Dieser berührt die Innenwandungen des versilberten Loches an verschiedenen Stellen, wobei durch die Leitfähigkeit des Silbers ein gleichmäßig anliegendes Potenzial auf der gesamten Oberfläche im Lochinneren gewährleistet ist.

7.2.3 Aufbringen der Anode

Bereits in Kapitel 5 sind unterschiedliche Herstellungsverfahren zur Strukturierung von Elektroden vorgestellt worden. Das Aufbringen der Anode auf die flache Faseroberfläche erfolgt durch eines dieser Strukturierungsverfahren – durch optische Lithographie. Zuvor wird die Faser mit der flachen Oberfläche nach oben ausgerichtet und zur besseren Handhabung in dieser Lage auf einem Quarzglasträger befestigt.

Auch hier soll die Anode, genau wie bereits in Kapitel 6.7 bei planaren Proben durchgeführt, mit einer gitterförmigen Struktur versehen werden, um durch periodische Polung eine Quasiphasenanpassung zu erzielen.

Dazu sei an dieser Stelle noch eine Bemerkung zur Wahl der Stegbreite der hergestellten periodischen Elektrodenstruktur angebracht. Im Gegensatz zum Polungsvorgang in Kristallen verlaufen die gepolten Bereiche durch die Verbreiterung des elektrischen Feldes im Quarzglas nicht rechteckförmig. Wie in Abbildung 7.8 dargestellt ist, befindet sich bei Verwendung einer D-förmigen Quarzglasfaser der Faserkern im Abstand δ von der Oberfläche entfernt. Dadurch ergibt sich, bei einer an der Oberfläche anliegenden symmetrischen Periodenstruktur, für die am Faserkern wirksamen gepolten und ungepolten Abschnitte ein fehlerhaftes, von 50:50 abweichendes Tastverhältnis.

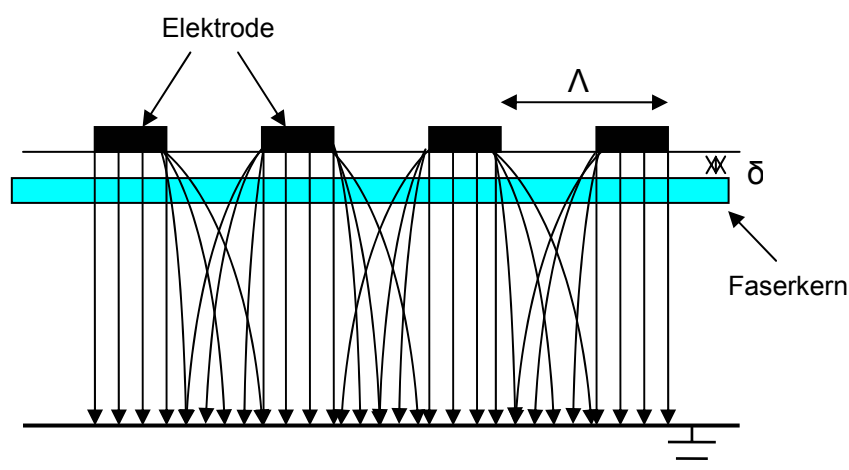


Abbildung 7.8 Darstellung der Verbreiterung des elektrischen Feldes mit zunehmendem Abstand von den einzelnen Elektrodenstegen.

Um dem entgegenzuwirken, ist es erforderlich, die Stegbreiten der Elektrodenstruktur zu schmälern, wodurch unter Aufrechterhaltung der Periodenlänge Λ die Stegbreiten unter 50 %, also unter $\Lambda/2$ liegen müssen. Aufgrund des geringen Abstandes δ zwischen der Oberfläche und dem Faserkern wird für die Stegbreiten der Elektrodenkämme ein Tastverhältnis von $\sim 45\%$ verwendet. Ähnliche Werte sind auch von anderen Forschungsgruppen bekannt [KAZ04, CHE05].

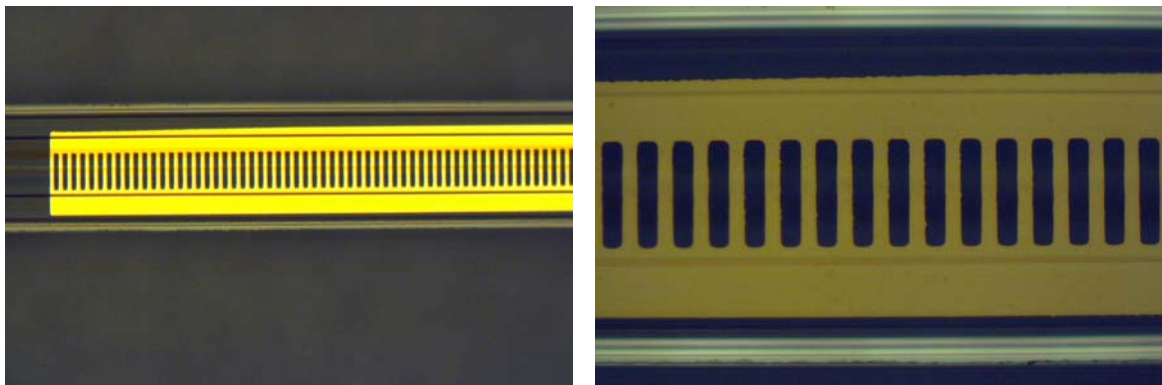


Abbildung 7.9 *Durch optische Lithographie auf der flachen Oberfläche einer D-Faser hergestellte gitterförmige Goldelektrode.
Periode: $48\ \mu\text{m}$, Stegbreite: $21\ \mu\text{m}$, Freiraum: $27\ \mu\text{m}$.*

In Abbildung 7.9 ist eine lithographisch hergestellte Elektrodenstruktur dargestellt, welche auf die flache Oberfläche einer D-Faser aufgebracht wurde. Die Elektrodenlänge beträgt $7\ \text{mm}$, und als Elektrodenmaterial wurde Gold verwendet. Nach den bereits aus Kapitel 6.7 erhaltenen Ergebnissen wurde für die Periodenlänge ein Wert von $48\ \mu\text{m}$ gewählt. Aufgrund der eben geschilderten Überlegungen wurden Gitterstrukturen mit unterschiedlichen Stegbreiten hergestellt (Tabelle 7.2). Bei der in Abbildung 7.9 dargestellten Elektrode beträgt die Stegbreite $21\ \mu\text{m}$, und demzufolge beläuft sich die Breite zwischen den Stegen auf $27\ \mu\text{m}$.

7.2.4 Polung der Faser

Nachdem die Faserproben mit den entsprechenden Elektroden versehen wurden, sind sie nun bereit für die Polung. Dafür wurde die gitterförmige Anode mit elektrischen Anschlüssen versehen und mit dem positiven Pol der Polungsapparatur verbunden. Der Kathodendraht wurde direkt mit dem negativen Pol der Polungsapparatur verbunden. Die Polung der Fasern erfolgte für $\sim 30\ \text{min}$ bei $4\text{--}6\ \text{kV}$.

und 280 °C in der in Kapitel 4.1 vorgestellten Polungsapparatur. Die verwendeten Polungsparameter wurden gemäß den bereits in Kapitel 6 bei der Polung von planaren Proben gefundenen Ergebnissen ausgewählt.

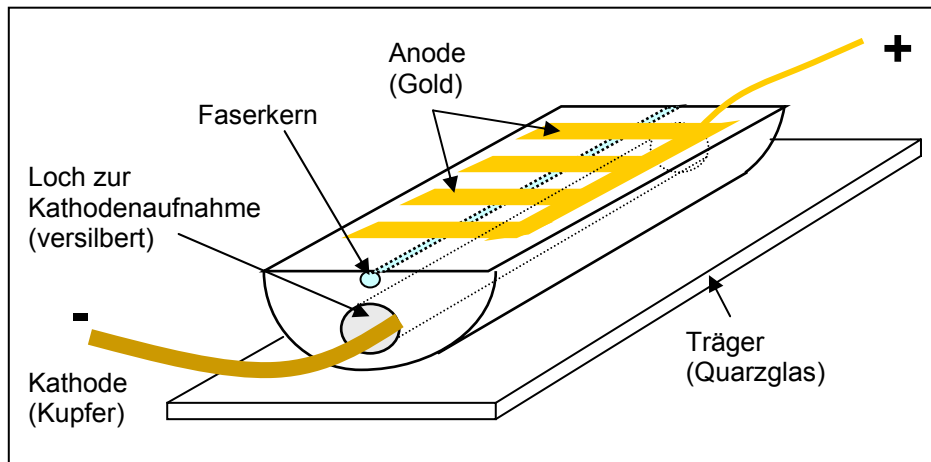


Abbildung 7.10 Schematische Darstellung einer D-Faser, vorbereitet zur Polung.

Nachdem die Polung der Fasern erfolgt ist, können die Drahtelektroden vorsichtig durch mechanische Zugwirkung aus den Fasern entfernt werden. Die Ablösung der gitterförmigen Goldanoden erfolgt mittels Kaliumjodid/-Jodlösung, analog den Ausführungen in Kapitel 5.2.4.

Der so verbliebene Lichtwellenleiter, eine $\sim 10\text{ cm}$ lange, D-förmige, optische Quarzglasfaser, sollte nun über eine Länge von 7 mm periodisch gepolte Bereiche besitzen, in denen eine effektive Nichtlinearität zweiter Ordnung vorliegt. Um eine effiziente Lichteinkopplung in diese Faser zu ermöglichen, wurden im Folgenden die Stirnflächen durch eine angepasste Poliertechnik bearbeitet. Nun können die optischen Untersuchungen an dieser Faser durchgeführt werden.

7.3 SHG-Nachweis in der gepolten Quarzglasfaser

Für die optischen Untersuchungen an den gepolten Quarzglasfasern wurde wieder der in Kapitel 4.2 beschriebene, und in Abbildung 4.4 schematisch dargestellte Nachweismessplatz verwendet. Wie sich durch zahlreiche Experimente herausgestellt hat, lassen sich durch eine 4-f-Abbildung zwischen der Zuführungsfaser und der gepolten Faserprobe stabile und reproduzierbare Ergebnisse erzielen (Abb. 7.11).

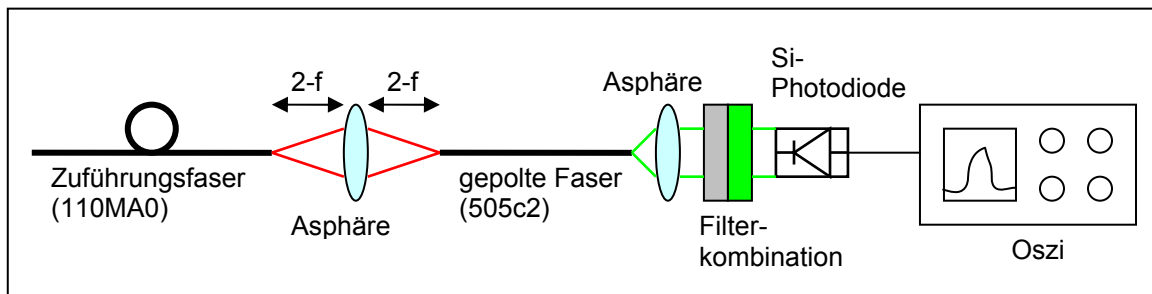


Abbildung 7.11 Prinzipielle Darstellung des SHG-Nachweises in gepolten Quarzglasfasern.

Eine direkte Stoß-Kopplung zwischen Zuführungsfaser und gepolter Faserprobe führte trotz Immersionsflüssigkeit in vielen Fällen durch Leistungsüberhöhung zur Zerstörung der Endfläche der Zuführungsfaser bzw. der Einkoppefläche der gepolten Faserprobe.

In Tabelle 7.2 sind einige untersuchte Faserproben aufgelistet. Alle Proben bestehen aus der Faser 505c2 und wurden so präpariert, wie es in den vorhergehenden Abschnitten beschrieben worden ist. Die Polungstemperatur betrug bei allen Proben 280 °C.

Probe	Gitterlänge [mm]	Periode/Stegbreite [µm]	Spannung [V]	Polungszeit [min]	SHG-Signal (Spitzenleistung)
1	7	47 / 22	4000	30	16 µW
2	6	47 / 21	6000	25	57 µW
3	7	48 / 21	5000	25	7,8 mW
4	7	49 / 22	5000	25	330 µW
5	7	48 / 18	5000	30	32 µW

Tabelle 7.2 Gitterlängen, Gitterperioden, Polungsparameter und SHG-Spitzenleistung einiger gepolter Faserproben, an denen SHG-Untersuchungen durchgeführt wurden.

Simulationsrechnungen, welche mit dem Programm OPTIFIBER der Firma OPTIWAVE durchgeführt wurden, haben ergeben, dass die verwendete Faser 505c2 bei der Fundamentalwellenlänge von 1064 nm sechs Moden führt [OPT07]. Dieses sind die LP_{01} , LP_{02} , LP_{11} , LP_{12} , LP_{21} und LP_{31} . Bei einer Wellenlänge von 532 nm werden von der Faser 505c2 sogar 21 Moden geführt. Werden nun für die Berechnung der Gitterperiode die effektiven Brechungsindizes

der jeweils miteinander wechselwirkenden Moden eingesetzt, so ergibt sich daraus eine Vielzahl von Kombinationsmöglichkeiten. Die so erhaltenen Gitterperioden liegen in Abhängigkeit der jeweils miteinander wechselwirkenden Moden zwischen $45\ \mu\text{m}$ und $49\ \mu\text{m}$. Deshalb wurden für die Polung der Faserproben teilweise unterschiedliche Gitterperioden eingesetzt (Tab.7.2).

Das eindeutig beste Ergebnis wurde mit Faserprobe Nummer 3 erhalten. Für diese Probe sind die Konversionseffizienz und die Leistung der zweiten Harmonischen in Abhängigkeit der Leistung der Fundamentalwelle in Abbildung 7.12 graphisch dargestellt.

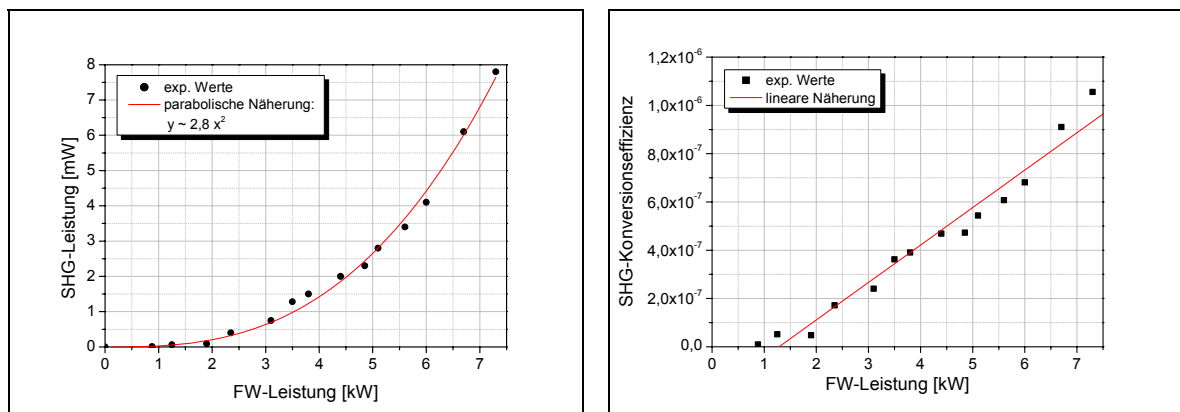


Abbildung 7.12 Quadratische Abhängigkeit der SHG-Leistung und lineare Abhängigkeit der SHG-Konversionseffizienz von der Leistung der Fundamentalwelle für Faserprobe 3.

Darin ist deutlich zu erkennen, dass die SHG-Leistung quadratisch und die Konversionseffizienz linear anwächst, genau wie Gleichung (2.25) erwarten lässt. Die durch Probe Nummer 3 erreichte mittlere SHG-Leistung liegt bei $1\ \text{nW}$, und die SHG-Spitzenleistung beträgt $7,8\ \text{mW}$. Die zugehörige mittlere Leistung der Fundamentalwelle beträgt $955\ \mu\text{W}$, und ihre Spitzenleistung $7,3\ \text{kW}$. Damit konnte eine Konversionseffizienz von 10^{-6} erreicht werden. Die somit in einer gepolten Quarzglasfaser generierte zweite Harmonische im VIS bei $532\ \text{nm}$ war auch visuell deutlich zu erkennen (Abbildung 7.13).

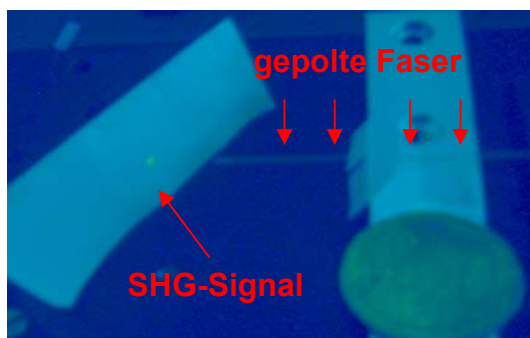


Abbildung 7.13
In der gepolten Faserprobe 3 erzeugte zweite Harmonische bei $532\ \text{nm}$.

Mit Hilfe von Gleichung (2.24) lässt sich die zu erwartende Leistung der zweiten Harmonischen theoretisch abschätzen. Hierfür werden für die jeweiligen Brechungsindizes $n_{1046} = 1,44968$ und $n_{532} = 1,4608$, die Dielektrizitätskonstante $\epsilon_0 = 8,8 \cdot 10^{-12} \text{ As/Vm}$, die Vakuumlichtgeschwindigkeit $c = 299792 \text{ km/s}$, und die Kreisfrequenz $\omega = 1,77 \cdot 10^{15} \text{ Hz}$ eingesetzt. Der Radius der durchstrahlten Querschnittsfläche beträgt $20 \mu\text{m}$, und die Leistung der Fundamentalwelle beträgt $7,3 \text{ kW}$. Für den nichtlinearen Koeffizient d wird der in Kapitel 6.5 abgeschätzte Wert von $d = 0,012 \text{ pm/V}$ eingesetzt. Unter Berücksichtigung des in Gleichung (2.48) geschilderten Korrekturfaktors von $\eta_{\text{QPM}} \sim 0,1 \eta_{\text{SHG}}$ für QPM mit Änderung von $d(z)$ von $+d_{\text{Bulk}}$ nach $0 (+/0)$, und unter Berücksichtigung der Tiefenausdehnung der *depletion-layer* von $\sim 6 \mu\text{m}$, was bei einem Kernradius von $20 \mu\text{m}$ einem Flächenverhältnis von $9,4 \%$ entspricht, ergibt sich daraus für die Leistung der zweiten Harmonischen der abgeschätzte Wert von $P_{2\omega} \sim 24 \text{ mW}$. Dieser theoretisch berechnete Wert liegt in der gleichen Größenordnung wie das experimentell erhaltene Ergebnis von $7,8 \text{ mW}$. Die Abweichungen zwischen dem theoretisch berechneten und experimentell erhaltenen Wert könnten in der Multimodigkeit der verwendeten Faser begründet sein. Einerseits kommt es zu einer Aufteilung der Leistung auf die einzelnen Moden, welche nach Gleichung (2.24) quadratisch in die SHG-Leistung eingeht. Andererseits ist der Überlapp der existierenden Moden mit dem gepolten Bereich, welcher sich bei einem Kerndurchmesser von $40 \mu\text{m}$ nur $6 \mu\text{m}$ ausdehnt, von großer Wichtigkeit.

Mit der hier verwendeten periodisch gepolten Faser 505c2 konnte die Erzeugung der zweiten Harmonischen bestätigt werden. Dabei ist die Faser 505c2, wie bereits oben beschrieben, bei der verwendeten Wellenlänge von 1064 nm sogar multimodig. Die erreichten SHG-Leistungen und Konversionseffizienzen (Abb. 7.12) sind noch steigerungsfähig. Durch den Einsatz einer zumindest bei der Fundamentalwellenlänge monomodigen Faser könnte die Energieübertragung zwischen der Grundmode der Fundamentalwellenlänge und den beteiligten SHG-Moden definierter und effizienter ablaufen. Außerdem würde ein damit einhergehender Faserkern mit geringerem Durchmesser von der nur wenige Mikrometer ausgedehnten *depletion-layer* stärker durchsetzt werden, wodurch sich deren Wechselwirkung mit der Fundamentalmode erhöht.

Ebenfalls eine Steigerung der Konversionseffizienz könnte durch eine vergrößerte nichtlineare Wechselwirkungslänge erreicht werden, indem die Länge der Gitterelektroden von bisher 7 mm auf größere Längen ausgedehnt wird.

Weiterhin wäre der Einsatz einer bezüglich der Wellenlänge durchstimmbaren Fundamentalquelle von Vorteil. Dadurch könnte eine Feinabstimmung auf die exakte Periodenlänge für die Phasenanpassung erfolgen, welche zuvor durch die Polung mit der gitterförmigen Anode fest in die Faser eingebracht worden ist.

Die aktive $\chi^{(2)}$ -Quarzglasfaser besitzt damit das Potenzial, in zukünftigen integrierten photonischen Systemen als neuartiges Schlüsselement zu fungieren.

8 Zusammenfassung und Ausblick

Für die Erzeugung nichtlinear-optischer Effekte zweiter Ordnung, beispielsweise der zweiten Harmonischen, ist der Einsatz von nichtlinear-optischen Materialien ($\chi^{(2)}$ -Medien) erforderlich. Die traditionellen $\chi^{(2)}$ -Medien tragen allerdings nicht zur Robustheit und Kompaktheit bei, sie erfordern beim Einsatz einen anspruchsvollen Umgang (Justage, Phasenanpassung) und sie sind relativ teuer.

Ziel dieser Arbeit war es, in das inversionssymmetrische Quarzglas durch thermisches Polen eine effektive Nichtlinearität zweiter Ordnung ($\chi^{(2)}$) dauerhaft einzubringen. Dazu mussten die Verhältnisse während des Polungsprozesses modelliert, entsprechende Materialien gefunden und geeignete experimentelle Aufbauten bzw. Messverfahren entwickelt werden.

Ein wichtiges Ergebnis dieser Arbeit besagt, dass die im Quarzglas enthaltene Anzahl an Spurenelementen (Kationen) von signifikanter Bedeutung ist. Wie durch Modellrechnungen ermittelt und durch experimentelle Untersuchungen bestätigt wurde, wirkt sich die Anzahl dieser Spurenelemente entscheidend auf die Tiefenausdehnung der sich während des Polungsprozesses ausbildenden *depletion-layer* aus. Quarzgläser mit Kationenkonzentrationen im niedrigen ppm-Bereich erwiesen sich hierbei als geeignet, um eine Ausbildung der *depletion-layer* nachzuweisen.

Als Nachweis für die Existenz eines nach dem Polungsprozess im Quarzglas vorhandenen $\chi^{(2)}$ wurden gepolte Quarzglasproben zur Erzeugung der zweiten Harmonischen eingesetzt. Um dabei zusätzlich auf eine Quasi-Phasenanpassung zurückgreifen zu können, ist die Strukturierung mit periodischen Kammelektroden sowohl von planaren Proben, als auch von Faserproben erforderlich. Dazu wurden drei unterschiedliche Herstellungsverfahren untersucht, und die jeweils erzeugten Elektroden auf ihre Eignung hin getestet. Dabei lieferte die Elektrodenstrukturierung durch optische Lithographie bezüglich aller relevanten Anforderungen die besten Ergebnisse, weshalb dieses Verfahren zur Herstellung für die benötigten Elektroden eingesetzt wurde.

Mit Hilfe von Modellrechnungen wurde die Problematik eines Luftspaltes zwischen Elektrode und Quarzmaterial und dessen Einfluss auf die Tiefenausdehnung der *depletion-layer* diskutiert. Durch das Anwenden eines in diesem Zusammenhang neuartigen Verfahrens konnten die dadurch auftretenden Probleme umgangen werden. Die Innenwandungen einer speziellen D-Loch-Quarzglasfaser sind vor der Kathodenaufnahme mit einer leitfähigen Silberschicht überzogen worden, wodurch ein definiert anliegendes elektrisches Potenzial gewährleistet ist, und es somit zu keiner zusätzlichen Verminderung der Tiefenausdehnung der *depletion-layer* kommt.

Durch die in dieser Arbeit gesammelten Erkenntnisse an gepolten planaren Proben wurde es schließlich möglich, eine zur Polung geeignete Quarzglasfaser zu konzipieren und herzustellen. Bereits 1999 wurde in den Arbeiten von Kazansky et al. von der Erzeugung eines quasiphasenangepassten SHG-Signales in einer thermisch gepolten Quarzglasfaser berichtet [PRU99]. Seitdem ist es weltweit keiner weiteren Forschungsgruppe gelungen, diesen Erfolg zu reproduzieren. Im Rahmen dieser Arbeit konnte die Erzeugung eines quasiphasenangepassten SHG-Signales in einer periodisch gepolten Quarzglasfaser bestätigt werden.

Weiterhin erfolgte hier die Generation der zweiten Harmonischen bei 532 nm , d.h. es konnte durch Frequenzverdoppelung in einer gepolten Quarzglasfaser auch der sehr attraktive sichtbare Spektralbereich erschlossen werden.

Eine Steigerung der hier erreichten numerischen Werte bezüglich Ausgangsleistung oder Konversionseffizienz sollte durch weitere Optimierungsschritte der für Polungsuntersuchungen hergestellten Quarzglasfasern (Materialparameter, Monomodigkeit, nichtlineare Wechselwirkungslänge) möglich sein.

Generell besitzen gepolte Quarzglasfasern somit das Potenzial, Funktionen zu übernehmen, welche bisher ausschließlich von nichtlinear-optischen Kristallen erfüllt wurden, wie Frequenzkonversion oder elektro-optisches Schalten und Modulieren. Die Vorteile solcher gepolten, faseroptischen Bauelemente liegen vor allem in den niedrigen Herstellungskosten und in der einfachen Integrationsfähigkeit zu anderen faseroptischen oder integriert-optischen Komponenten.

Besonders vielversprechend erscheint hierbei der Einsatz in All-Faser-Systemen, beispielsweise zur Frequenzkonversion von Faserlaserstrahlung in den sichtbaren Spektralbereich.

9 Literaturverzeichnis

- [AGR01] G.P. Agrawal: "Nonlinear Fiber Optics", Academic Press, San Diego San Francisco New York Boston London Sydney Tokio, 2001
- [ALL98] T.G. Alley, S.R.J. Brueck, R.A. Myers: "Space charge dynamics in thermally poled fused silica", Journal of Non-Crystalline Solids, 242, 165-176, 1998
- [ALL99] T.G. Alley, S.R.J. Brueck, M. Wiedenbeck: "Secondary ion mass spectrometry study of space-charge formation in thermally poled fused silica", Journal of Applied Physics, Vol.86, No.12, 6634-6640, 1999
- [AN04] H. An, S. Fleming, G. Cox: "Visualization of second-order nonlinear layer in thermally poled fused silica glass", Applied Physics Letters, Vol.85, No.24, 5819-5821, 2004
- [AN05] H. An, S. Fleming: "Investigation of the spatial distribution of second-order nonlinearity in thermally poled optical fibers", Optics Express, Vol.13, No.9, 3500-3505, 2005
- [ARM62] J.A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing, P.S. Pershan: "Interactions between Light Waves in a Nonlinear Dielectric", Physical Review, Vol.127, No.6, 1918-1939, 1962
- [BET75] C.G. Bethea: "Electric field induced second harmonic generation in glass", Appl. Opt., Vol.14, No.10, 2435-2437, 1975
- [BOY68] G.D. Boyd, D.A. Kleinmann: "Parametric Interaction of Focused Gaussian Light Beams", Journal of Applied Physics, Vol.39, No.8, 3597-3639, 1968
- [BOY92] R.W. Boyd: "Nonlinear Optics", Academic Press, San Diego, CA, 1992
- [BUT90] P.N. Butcher, D. Cotter: "The elements of nonlinear optics", Cambridge University Press, Cambridge New York Port Chester Melbourne Sydney, 1990
- [CAL98] A. Le Calvez, E. Freysz, A. Ducasse: "A model for second harmonic generation in poled glasses", European Physical Journal D, 1, 223-226, 1998
- [CHA03] H.-Y. Chen, J.-S. Sue, Y.-H. Lin, C.-S. Tsai, P.-T. Wu, S. Chao: "Thermal poling and ultraviolet erasure characteristics of type-III ultraviolet-grade fused silica and application to periodic poling on planar substrates", Journal of Applied Physics, Vol.94, No.3, 1531-1538, 2003
- [CHE03] H.-Y. Chen, J.-S. Sue, Y.-H. Lin, S. Chao: "Quasi-phase-matched second-harmonic generation in ultraviolet-assisted periodically poled planar fused silica", Optics Letters, Vol.28, No.11, 917-919, 2003
- [CHE05] H.-Y. Chen, C.-L. Lin, Y.-H. Yang, S. Chao, H. Niu, C.T. Shih: "Creation of second-order nonlinearity and quasi-phase-matched second harmonic generation in Ge-implanted fused silica planar waveguide", Applied Physics Letters, 86, 081107, 1-3, 2005
- [COR03] C. Corbari, O. Deparis, B.G. Klappauf, P.G. Kazansky: "Practical technique for measurement of second-order nonlinearity in poled glass", Electronics Letters, Vol.39, No.2, 197-198, 2003
- [FAC01] D. Faccio, V. Pruneri, P.G. Kazansky: "Dynamics of the second-order nonlinearity in thermally poled silica glass", Applied Physics Letters, Vol.79, No.17, 2687-2689, 2001
- [FEJ92] M.M. Fejer, G.A. Magel, D.H. Jundt, R.L. Byer: "Quasi-Phase-Matched Second Harmonic Generation: Tuning and Tolerances", IEEE Journal of Quantum Electronics, Vol.28, No.11, 2631-2654, 1992
- [FEJ00] G. Imeshev, M.A. Arbore, M.M. Fejer, A. Galvanauskas, M. Fermann, D. Harter: "Ultrashort-pulse second-harmonic generation with longitudinally nonuniform quasi-phasesmatching gratings: pulse compression and shaping", J. Opt. Soc. Am. B, Vol.17, No.2, 304-318, 2000
- [FRA61] P.A. Franken, A.E. Hill, C.W. Peters, G. Weinreich: "Generation of optical harmonics", Phys. Rev. Letters, Vol.7, No.4, 118-119, 1961

- [FRA05] C.S. Franco, G.A. Quintero, N. Myren, A. Kudlinski, H. Zeglache, H.R. Carvalho, A.L.C. Triques, D.M. Gonzalez, P.M.P. Gouvea, G. Martinelli, Y. Quiquempois, B. Lesche, W. Margulis, I.C.S. Carvalho: "Measurement of depletion region width in poled silica", Applied Optics, Vol.44, No.27, 5793-5796, 2005
- [FUJ00] T. Fujiwara, S. Matsumoto, M. Ohama, A. J. Ikushima: "Origin and properties of second-order optical non-linearity in ultraviolet-poled GeO₂-SiO₂ glass", J. of Non-Crystalline Solids, 273, 203-208, 2000
- [GEC90] S. Geckeler: "Lichtwellenleiter für die optische Nachrichtenübertragung", 3. Auflage, Springer-Verlag, Berlin Heidelberg New York, 1990
- [GRI81] D.L. Griscom, E.J. Friebele: "Fundamental defect centers in glass: ²⁹Si hyperfine structure of the nonbridging oxygen hole center and the peroxy radical in α -SiO₂", Phys. Rev. B 24, 4896-4898, 1981
- [HCP07] www.hcphotonics.com
- [HER05] <http://www.heraeus-quarzglas.com>, "Quarzglas für die Optik – Daten und Eigenschaften"
- [HIP53] A. von Hippel, E.P. Gross, J.G. Jelatis, M. Geller: "Photocurrent, Space-Charge Buildup, and Field Emission in Alkali Halide Crystals", Physical Review, Vol.91, No.3, 568-579, 1953
- [INO07] www.ino.ca
- [KAM01] A. Kameyama, A. Yokotani, K. Kurosawa: "Identification of defects associated with second-order optical nonlinearity in thermally poled high-purity silica glasses", Journal of Applied Physics, Vol.89, No.9, 4707-4713, 2001
- [KAM02] A. Kameyama, A. Yokotani, K. Kurosawa: "Generation and erasure of second-order optical nonlinearities in thermally poled silica glasses by control of point defects", J. Opt. Soc. Am. B, Vol.19, No.10, 2376-2383, 2002
- [KAS94] R. Kashyap, G.J. Veldhuis, D.C. Rogers, P.F. Mckee: "Phase-matched second-harmonic generation by periodic poling of fused silica", Appl. Phys. Letters, Vol.64, No.11, 1332-1334, 1994
- [KAZ94] P.G. Kazansky, P.St.J. Russel: "Thermally poled glass: frozen-in electric field or oriented dipoles?", Optics Communications, 110, 611-614, 1994
- [KAZ04] Peter Kazansky, persönliche Mitteilung, Summer School on Advanced Glass-Based Nano-Photonics, Bath, UK, 2004
- [KEI98] Keithley Instruments. Inc. "Low Level Measurements", 5th Edition, Section 2.3.6, 2-26, 1998
- [KIE69] S. Kielich: "Optical Second-Harmonic Generation by Electrically Polarized Isotropic Media", IEEE Journal of Quantum Electronics, Vol.QE-5, No.12, 562-568, 1969
- [KÖH97] Thomas Köhler: "Dissertation", Physikalisch-Astronomisch-Technik-wissenschaftliche Fakultät, Friedrich-Schiller-Universität Jena, 1997
- [KRI88] U.K. Krieger, W.A. Lanford: "Field assisted Transport of Na⁺Ions, Ca⁺Ions and Electrons in commercial Soda-Lime Glass I: Experimental", Journal of Non-Crystalline Solids, 102, 50-61, 1988
- [KUA05] A. Kudlinski, Y. Quiquempois, G. Martinelli: "Room temperature aging of the $\chi^{(2)}$ susceptibility induced in silica glasses by thermal poling", Applied Physics Letters, 86, 161909, 2005
- [KUD03] A. Kudlinski, Y. Quiquempois, M. Zelek, H. Zeglache, G. Martinelli: "Complete characterization of the nonlinear spatial distribution induced in poled silica glass with a submicron resolution", Applied Physics Letters, Vol.83, No.17, 3623-3625, 2003
- [KUM05] A. Kudlinski, G. Martinelli, Y. Quiquempois: "Time evolution of second-order nonlinear profiles induced within thermally poled silica samples", Optics Express, Vol.30, No.9, 1039-1041, 2005-10-19
- [KUO05] A. Kudlinski, Y. Quiquempois, G. Martinelli: "Modeling of the $\chi^{(2)}$ susceptibility time-evolution in thermally poled fused silica", Optics Express, Vol.13, No.20, 8015-8024, 2005
- [LAN79] W.A. Lanford, K. Davis, P. LaMarche, T. Laursen, R. Groleau, R.H. Doremus: "Hydration of soda-lime glass", Journal of Non-Crystalline Solids, 33, 249-266, 1979
- [LAU93] W. Lauterborn: "Kohärente Optik", Springer Verlag, 1993
- [LAX77] M.Lax: "Temperature rise Induced by A Laser beam ", J. Appl. Phys., Vol.48, No.9, 3919-3924, 1977
- [LEV01] H.J. Levinson: "Principles of Lithography", SPIE-Press, Bellingham Washington, 2001

- [LIU94] A.C. Liu, M.J.F. Digonnet, G.S. Kino: "Electro-optic phase modulation in silica channel waveguide", *Optics Letters*, Vol.19, 466-468, 1994
- [LIJ01] X.-M. Liu, M.-D. Zhang: „Theoretical Study for Thermal/Electric Field Poling of Fused Silica“, *Jpn. J. Appl. Phys.*, Vol.40, 4069-4076, 2001
- [LIA01] X.-M. Liu, H.-Y. Zhang, Y.-L. Guo, X.-P. Zheng, Y.-H. Li: „Modeling of Thermal/Electric-Field Poling“, *Jpn. J. Appl. Phys.*, Vol.40, L807-L809, 2001
- [LOR07] A. Lorenz: persönliche Mitteilung, 2007
- [MAG04] W. Margulis: "Poling of Glass", Lecture 6, POWAG-Summer-School-2004, Newton St.Loe, Bath, United Kingdom, 2004
- [MAG05] W. Margulis: "Achievements of the Glamorous project on poling", BGPP 2005, Sydney, Australia, 2005
- [MAK62] P.D. Maker, R.W. Terhune, M. Nisenoff, C.M. Savage: "Effects Of Dispersion And Focusing On The Production Of Optical Harmonics", *Physical Review Letters*, Vol.8, No.1, 21-22, 1962
- [MUK94] N. Mukherjee, R.A. Myers, S.R.J. Brueck: "Dynamics of second-harmonic generation in fused silica", *J. Opt. Soc. Am. B*, Vol.11, No.4, 665-669, 1994
- [MYE91] R.A. Myers, N. Mukherjee, S.R.J. Brueck: "Large second-order nonlinearity in poled fused silica", *Optics Letters*, Vol.16, No.22, 1732-1734, 1991
- [OES86] U. Österberg, W. Margulis: "Dye laser pumped by Nd:YAG laser pulses frequency doubled in a glass optical fiber", *Optics Letters*, Vol.11, No.8, 516-518, 1986
- [OPT07] www.optifiber.com
- [PRU99] V. Pruneri, G. Bonfrate, P.G. Kazansky, D.J. Richardson, H.G. Broderick, J.P. de Sandro, C. Simonneau, P. Vidakovic, J.A. Levenson: "Greater than 20%-efficient frequency doubling of 1532-nm nanosecond pulses in quasi-phase-matched germanosilicate optical fibers", *Optics Letters*, Vol.24, No.4, 208-210, 1999
- [RAI07] www.raicol.com
- [RED02] L. Redlich: persönliche Mitteilung, 2002
- [RÜS98] C. Rüssel, D. Ehrh: „Neue Entwicklungen in der Glaschemie“, *Chemie in unserer Zeit*, 32.Jahrgang, Nr.3, 1998
- [SCH83] K. Schade: „Halbleitertechnologie – Band 2: Dotierung, Maskierung, Montage“, Verlag Technik Berlin, 1. Auflage, 1983
- [SCH07] <http://www.schott.com/lithotec>, "Synthetic Fused Silica – Optical and technical grades"
- [SHE98] J.R. Sheats, B.W. Smith: "Microlithography – Science and Technology", Marcel Dekker, Inc., New York Basel, 1998
- [STR00] A. Strauß: "Einflüsse der Manteleigenschaften und Wickelgeometrien auf die Effizienz mantelgepumpter Faserlaser", Diplomarbeit, Friedrich-Schiller-Universität Jena, 2000
- [STR05] A. Strauß, S. Brückner, U. Röpke, H. Bartelt: „Thermal Poling of Silica“, *DGaO-Proceedings*, P53, 2005
- [STRa07] A. Strauß, S. Brückner, R. Pöhlmann, V. Reichel, H. Bartelt: „Structured electrodes on optical fibers“, *Optik - International Journal for Light and Electron Optics*, doi:10.1016/j.ijleo.2007.02.007, 2007
- [STRb07] A. Strauss, U. Roepke, V. Reichel, H. Bartelt: „Parametrische Untersuchungen an gepoltem Quarzglas“, *DGaO-Proceedings*, B23, 2007
- [VOG92] W. Vogel: "Glaschemie", Springer-Verlag, Berlin Heidelberg New York, 3.Auflage, 1992
- [VOL00] F. Völklein, T. Zetterer: "Einführung in die Mikrosystemtechnik", Verlag Vieweg, 2000
- [WEG05] M. Wegener: "Extreme Nonlinear Optics", Springer-Verlag, Berlin Heidelberg New York, 2005
- [XU00] W. Xu, P. Blazkiewicz, D. Wong, S. Fleming, T. Ryan: „Specialty optical fibre for stabilising and enhancing electro-optic effect induced by poling“, *Electronic Letters*, Vol.36, No.15, 1265-1266, 2000
- [YAR71] A. Yariv: "Introduction to Optical Electronics", Hold, Rinehart and Winston, Inc., New York Chicago San Francisco Atlanta Dallas Montreal Toronto London Sydney, 1971
- [ZAC32] W. H. Zachariasen: „The atomic arrangement in glass“, *J. Amer. Ceram. Soc.* 54, 3841-3851, 1932

Danksagung

Ich danke meinem Doktorvater Prof. Dr. H. Bartelt für die interessante Aufgabenstellung und die Möglichkeit, diese Arbeit am Institut für Photonische Technologien (IPHT) e.V. durchführen zu können.

Meinen Abteilungsleitern Dr. H.-R. Müller und V. Reichel danke ich für das entgegengebrachte Vertrauen und die mir übertragene Verantwortung während meiner Forschungstätigkeiten am IPHT.

Besonders bedanken möchte ich mich bei Dr. U. Röpke für die tatkräftige Unterstützung und die tiefgründigen, kritischen und in jeder Hinsicht umfangreichen Diskussionen.

Weiterhin möchte ich mich bei allen Mitarbeitern und Kollegen bedanken, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben. Dazu gehören insbesondere S. Bublit, S. Brückner, Dr. J. Kobelke, S. Grimm, Dr. K. Schuster, Dr. S. Unger, U. Jauernig, S. Fehling, R. Pöhlmann, M. Arnz, M. Scheuermann und Dr. M. Diegel vom IPHT, sowie A. Lorenz von der Universität Paderborn.

Den größten Dank möchte ich meinen Eltern und meinem Bruder aussprechen, welche mich insbesondere bei Rückschlägen und in schwierigen Situationen immer wieder unterstützt und motiviert haben.

Schließlich sei hier auch ein herzlicher Dank an all meine Freunde ausgesprochen, welche mir durch gemeinsame gesellschaftliche oder sportliche Unternehmungen einen schönen Ausgleich zur Forschungsarbeit ermöglichten.

Lebenslauf

zur Person:

Name: Alexander Strauß
Geburtsdatum: 29. August 1974
Geburtsort: Gera
Familienstand: ledig

Schul Ausbildung:

1981 - 1989 Polytechnische Oberschule „Karl-Marx“, Kraftsdorf
1990 - 1991 Erweiterte Oberschule „Karl-Theodor-Liebe“, Gera
1991 - 1993 Zabel-Gymnasium, Gera
1993 Abitur

Zivildienst:

1993 - 1994 Volkssolidarität – Kreisverband Gera e.V.

Hochschulausbildung:

1994 - 2000 Physik-Studium an der Friedrich-Schiller-Universität Jena,
2000 Abschluss des Studiums als Diplom-Physiker,
Thema der Diplomarbeit:
Einflüsse der Manteleigenschaften und Wickelgeometrien auf die Effizienz mantelgepumpter Faserlaser

Forschungstätigkeiten:

2001 - 2007 Doktorand am Institut für Photonische Technologien (IPHT) e.V. Jena,

Mitarbeit in verschiedenen Projekten mit Schwerpunkten in Faserlaserentwicklung und nichtlinearer Optik

Bearbeitung eines Forschungsprojektes:
Erforschung innovativer nichtlinearer Effekte in Quarzglas und in optischen Fasern (Erzeugung einer Nichtlinearität 2. Ordnung in Quarzglasfasern, Frequenzkonversion)

Aufbau und Untersuchungen an diversen Messplätzen:
- *Nah- und Fernfeldmessplatz:*
Modenfeldcharakterisierung, Aperturmessungen
- *Pumpabsorptionsmessplatz:*
Bestimmung der Pumplichtabsorption in Faserlasern
- *OTDR:*
Dämpfungsmessungen in optischen Fasern
- *Faserlasermessplatz:*
Erzeugung maximaler Pulsspitzenleistungen in Faserlasern

Betreuung von Diplomanden und Physikstudenten der Friedrich-Schiller-Universität Jena im Rahmen des physikalischen Fortgeschrittenenpraktikums

Ehrenwörtliche Erklärung

Ich erkläre hiermit ehrenwörtlich, dass ich die vorliegende Arbeit selbständig, ohne unzulässige Hilfe Dritter und ohne Benutzung anderer als der angegebenen Hilfsmittel und Literatur angefertigt habe. Die aus anderen Quellen direkt oder indirekt übernommenen Daten und Konzepte sind unter Angabe der Quellen gekennzeichnet.

Weitere Personen waren an der inhaltlich-materiellen Erstellung der vorliegenden Arbeit nicht beteiligt. Insbesondere habe ich hierfür nicht die entgeltliche Hilfe von Vermittlungs- bzw. Beratungsdiensten (Promotionsberater oder andere Personen) in Anspruch genommen. Niemand hat von mir unmittelbar oder mittelbar geldwerte Leistungen für Arbeit erhalten, die im Zusammenhang mit dem Inhalt der vorgelegten Dissertation stehen.

Die Arbeit wurde bisher weder im In- noch im Ausland in gleicher oder ähnlicher Form einer anderen Prüfungsbehörde vorgelegt.

Die geltende Promotionsordnung der Physikalisch-Astronomischen Fakultät ist mir bekannt.

Ich versichere ehrenwörtlich, dass ich nach bestem Wissen die reine Wahrheit gesagt und nichts verschwiegen habe.

Jena, den 03. April 2008

Alexander Strauß